

Erzeugung von XUV- und Röntgenstrahlung mit Femtosekunden-Laserimpulsen

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Universität – Gesamthochschule – Essen

von Gerald Jenke
aus Gelsenkirchen

Essen, Dezember 1999

Vorsitzender des Prüfungsausschusses: Prof. Dr. L. Schäfer
Gutachter: Prof. Dr. D. von der Linde
Prof. Dr. V. Buck

Tag der mündlichen Prüfung: 7. Juni 2000

„Das Wesentliche ist für die Augen unsichtbar“
ANTOINE DE SAINT-EXUPÉRY [1]

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	III
1.1 Erzeugung höherer Harmonischer	V
1.2 Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen	VI
2. Theoretische Modelle	1
2.1 Erzeugung optischer Harmonischer hoher Ordnung an Festkörperoberflächen	1
2.1.1 Das Modell des oszillierenden Spiegels	3
2.1.2 Das Dichtestufenmodell	9
2.1.3 Hydrodynamisches Zwei-Flüssigkeitsmodell	12
2.1.4 Ergebnisse der Modelle	13
2.2 Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen	15
3. Experimentelle Grundlagen	17
3.1 Ultrakurzzeit Lasersysteme	17
3.2 VUV-Spektrometer	18
3.3 Hohlkathodenentladungsquelle als Kalibrierstandard	22
3.4 Detektoren für den XUV- und Röntgenbereich	26
3.4.1 CCD-Detektoren	26
3.4.2 Strahlenschäden in CCD-Detektoren	29
3.4.3 Phosphor-Detektoren	34
3.5 Röntgenkristalle und Spiegel	36
3.5.1 Braggreflexion an ebenen Kristallen	36
3.5.2 Von Hamos Spektrometer	39
3.5.3 Gebogene Kristalle	40
3.5.4 Abbildungseigenschaften gebogener Kristalle	43
3.5.5 Zeitliches Verhalten der Bragg-Reflektion	43
3.5.6 Herstellungsverfahren	45
4. Experimente	47
4.1 Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen	47
4.1.1 Experimenteller Aufbau	47
4.1.2 Spektren p-pol. Anregeimpuls	50
4.1.3 Spektren s-polarisierte Anregeimpulse	56

4.2	Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen	58
4.2.1	Emissionsspektren Aluminium und Silizium	60
4.2.2	Einfluß der Targetoberfläche	63
4.2.3	Kristalloptische Fokussierung der Röntgenstrahlung	67
5.	Diskussion und Ausblick	70
5.1	Anwendung ultrakurzer Röntgenimpulse	70
5.2	Perspektiven der Anwendung ultrakurzer VUV- und Röntgenquellen . . .	71
5.3	Anwendung der höheren Harmonischen	72
5.4	Weiterführende Experimente	72
5.5	Entwicklungspotential	73
5.6	Ausblick	74
	Literaturverzeichnis	76

1. Einleitung

Die Entwicklung von Lasern für ultrakurze, intensive Lichtimpulse hat in den letzten Jahren große Fortschritte gemacht. Die Entdeckung von neuen Lasermaterialien, wie z.B. dem Titan-Saphir Kristall, ermöglichte die Realisierung neuer Ultrakurzpuls-Laser mit extrem hohen Spitzenleistungen. Der Begriff "Table Top Terawatt (T^3)" verdeutlicht den Trend hin zu kleinen leistungsfähigen Lasersystemen. In Verbindung mit neuen Konzepten für die Verstärkung (Chirped Pulse Amplification, abgekürzt CPA) der Laserimpulse sind im Labor elektrische Feldstärken erreichbar geworden, die deutlich über denen der inneratomaren Felder liegen. Die Intensitäten im Fokus des Laserimpulses erreichen Werte von bis zu 10^{21} W/cm^2 . Eine Laserintensität von $3,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ entspricht einem elektrischen Feld von $5,14 \cdot 10^9 \text{ V/cm}^2$, was dem statischen elektrischen Feld des Protons im Wasserstoffatom, in dem sich das Elektron bewegt, entspricht. Bei derart hohen elektrischen Feldstärken kann der Einfluß des Laserlichts auf die atomaren Feldstärken nicht mehr als Störung behandelt werden. Die bisher angewandten Störungstheoretischen Modelle haben deshalb keine Gültigkeit mehr. Es mußten neue Modelle entwickelt werden, die unter anderem die oszillatorische Energie des freien Elektrons im Laserfeld, die sog. quiver energy, berücksichtigten. Dies wird durch die Einführung des ponderomotorischen Potentials erreicht:

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$

Hierbei stellt E die elektrische Feldstärke des Laserlichts dar. Die ponderomotorische Energie des Elektrons ist proportional zum Produkt aus Intensität und Wellenlänge des Laserlichts ($I\lambda^2$). Für die oben erwähnte Laserintensität von $3,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, also I_{at} beträgt die Energie bereits 3,5 keV. Ein hochenergetisches Elektron induziert bei der Wechselwirkung mit Materie elektromagnetische Strahlung.

In der vorliegenden Arbeit wird die Erzeugung von Strahlung im vakuum-ultravioletten Spektralbereich (VUV-Strahlung: 0,2 nm bis 200 nm) und im Röntgenspektralbereich durch die Bestrahlung von Festkörperoberflächen mit Femtosekunden-Laserimpulsen (fs-Laserimpulsen) beschrieben. Die Arbeit gliedert sich in zwei Teile:

1. Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen mit hochintensiven Femtosekunden-Laserimpulsen.
2. Erzeugung und Nachweis von Röntgenstrahlung mit intensiven Femtosekunden-Laserimpulsen aus Mikroplasmen.

Die Experimente wurden an Femtosekunden-Lasersystemen durchgeführt. Die Messungen zur Erzeugung der höheren Harmonischen wurden an dem CPA Titan-Saphir-Lasersystem ($\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau=100 \text{ fs}$, $E_{max}=60 \text{ mJ}$), an der Ecole Polytechnique ENSTA, Palaiseau, Frankreich, durchgeführt. Die Experimente zu Erzeugung der Röntgenemission wurden an dem Colliding-Puls-Modelocked (CPM) Farbstoff-Lasersystem ($\lambda = 620 \text{ nm}$, $\tau=100 \text{ fs}$, $E_{max}=5 \text{ mJ}$) der Universität GH-Essen durchgeführt.

1.1 Erzeugung höherer Harmonischer

Die Erzeugung von höheren Harmonischen in Gasen ist seit Jahren ein Gebiet intensiver Forschung [2]. Dabei wurden mit Titan–Saphir–Lasern Harmonische bis zur 299. Ordnung (454 eV, $\lambda = 2,72$ nm) [3] und mit Neodym–Glas–Lasern bis zur 135. Ordnung (160 eV, $\lambda = 7,8$ nm) erzeugt. Der Intensitätsverlauf der Harmonischen ist nach einem raschen Abfall bei den niedrigeren Harmonischen relativ konstant, um dann bei einer von Gas und Laserenergie abhängigen Wellenlänge („cut-off“) plötzlich rapide abzufallen. Außerdem bereitet die Phasenanpassung im Gas zwischen Grundwelle und Harmonischen mit zunehmender Ordnung Probleme [4].

Als eine neue interessante Möglichkeit bietet sich die Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen oder genauer an dünnen, dichten Laserplasmen an. Wie particle-in-cell Computersimulationen prognostizierten [5], sollten Harmonische hoher Ordnung ohne Auftreten einer „cut-off“ Wellenlänge zu beobachten sein. Unsere Experimente zeigen, daß die Intensität der Harmonischen stark abhängig von der Impulsform des Lasers ist. Der Impuls muß frei von Untergrund oder Vorläufern sein, da sonst ein Vorplasma erzeugt wird, in das der Hauptimpuls einkoppelt. Wie die Berechnungen von Lichters et al. [6] und ein in unserer Arbeitsgruppe entwickeltes Modell [7] zeigen, ist aber ein steiler Plasma–Dichtegradient für die Erzeugung Harmonischer notwendig. Da das Vorplasma aber auf einer Pikosekunden–Zeitskala erzeugt wird, ist die Voraussetzung eines steilen Gradienten nicht mehr erfüllt. Die theoretischen Modelle berechnen Harmonische bis hinauf zur 100. Ordnung, bei Laserintensitäten von 10^{18} W/cm².

Wie die Experimente zeigen, ist die Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen eine neue Methode zu Herstellung ultrakurzer, kohärenter Impulse im ultravioletten und weichen Röntgenbereich, die für die Anwendung interessante Eigenschaften aufweist.

- Die harmonische Strahlung besteht aus einzelnen monochromatischen Linien.
- Die Strahlung ist gut gebündelt und kohärent [8][9].
- Bedingt durch den Erzeugungsmechanismus ist die Impulsdauer gleich oder sogar kleiner als die des Anregeimpulses [10][11].

1.2 Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen

Aus der Wechselwirkung eines fokussierten fs-Laserimpuls mit einer Festkörperoberfläche entsteht ein Mikroplasma mit extremen Eigenschaften. Durch Stöße der energiereichen Elektronen mit Ionen wird Linienstrahlung sowie Kontinuumsstrahlung erzeugt. Die Linienstrahlung resultiert aus Übergängen der diskreten Energieniveaus der Ionen und ist somit die für das verwendete Targetmaterial charakteristische Strahlung. Die Kontinuumsstrahlung ist Rekombinationsstrahlung von Elektronen und Ionen sowie Bremsstrahlung im Festkörpermateriale. Mikroplasmen sind Strahlungsquellen, die in einem weiten Bereich des kurzwelligen Spektrums [12], bis hin zu MeV-Röntgenstrahlung, emittieren [13]. Die Dauer der Röntgenemission ist durch die Abkühlzeit des Plasmas bestimmt. Für den Abkühlprozeß sind zwei Effekte verantwortlich: Zum einen die elektronische Wärmeleitung, das heißt der Energietransport vom heißen Plasma in das kalte Material und zum anderen die Plasmaexpansion ins Vakuum aufgrund der extremen Dichte- und Druckgradienten. Da bis heute Methoden zur Messung der Impulsdauer im Röntgenbereich mit Femtosekunden Zeitauflösung fehlen, oder einen sehr hohen experimentellen Aufwand erfordern [10], kann die Röntgenimpulsdauer nur mit dem bisher erreichten Auflösungsvermögen der schnellsten elektronischen Streikkameras von etwa 0,5 ps [14] abgeschätzt werden. Die Röntgenimpulsdauer liegt damit aber deutlich (etwa zwei Größenordnungen) unterhalb der mit bisherigen Methoden, wie z. B. gepulste Röntgenquellen oder Synchrotronstrahlung, erreichten minimalen Impulsdauer. Mit fs-Laserimpulsen erzeugte Mikroplasmen stellen eine neuartige punktförmige Röntgenquelle dar, die, bedingt durch die Erzeugungsmechanismen, inkohärente Strahlung emittiert. Die Erzeugung und Charakterisierung der ultrakurzen Röntgenimpulse war in der Vergangenheit Gegenstand intensiver Forschung [15][16]. Aufgrund der Ergebnisse sind erste Anwendungen der Strahlung bereits durchgeführt worden [17][18]. Weitere Anwendungen wie z. B. Röntgenfluoreszenzmessungen mit extremer Zeitauflösung sind in Vorbereitung.

2. Theoretische Modelle

In diesem Kapitel werden die theoretischen Ansätze vorgestellt, die begleitend zu den Experimenten zur Erzeugung höherer Harmonischer entwickelt worden sind. Bei den Modellen werden die beiden Ansätze klassische Rechnungen und Computersimulation verfolgt. Das Modell des oszillierenden Spiegels beschreibt die Erzeugung der Harmonischen über eine starke Oszillation der Elektronendichte an der Oberfläche, die als bewegter Spiegel angesehen wird. Bei den Dichtestufenmodell wird das Flüssigkeitsmodell des kalten Plasmas zu Grunde gelegt. Bei den Particle-In-Cell Computer Simulationen werden im Phasenraum Makropartikel mit drei Geschwindigkeitskomponenten betrachtet. Die beiden klassischen Berechnungen liefern eine physikalische Interpretation der Erzeugung höherer Harmonischer und die PIC-Simulationen erlauben quantitative Berechnungen.

2.1 Erzeugung optischer Harmonischer hoher Ordnung an Festkörperoberflächen

Die Theorien zur Erzeugung von Harmonischen in Gasen sind von diversen Autoren [2][4] parallel zu den experimentellen Befunden entwickelt worden. Aufgrund der prinzipiellen physikalischen Begebenheiten lassen sich die Modelle aber nur sehr eingeschränkt auf die Erzeugung von Harmonischen an Festkörperoberflächen übertragen. Bei Gasen verfolgt die Theorie den Ansatz eines Elektrons im anharmonischen Potential eines einzelnen Atoms. Bei dem periodisch im Laserfeld oszillierenden Elektron werden die zeitlichen Änderungen des Dipolmoments berechnet. Das Spektrum der Harmonischen ergibt sich aus der Fouriertransformation. Die Lösungen der Maxwell-Gleichungen liefern die Beziehungen für die Propagation der Harmonischen im Medium. Als Problem bei der Erzeugung der Harmonischen erweist sich die Phasenanpassung zwischen fundamentaler Welle und Harmonischer. Aufgrund der unterschiedlichen Dispersion der Ausbreitungsgeschwindigkeit für verschiedene Wellenlängen im Gas ergeben sich unterschiedliche Phasen von Fundamentaler und Harmonischer. Die Wechselwirkungslänge im Medium muß deshalb genau angepaßt werden um destruktive Interferenz zu vermeiden. Auf Grund der großen Wellenlängenunterschiede zwischen anregendem Laserimpuls und den höheren Harmonischen wird dies jedoch zu hohen Ordnungen hin immer schwieriger. Experimentell wird nach einem starken Abfall der Intensität der Harmonischen unterer Ordnungen ein Plateau beobachtet, in dem die Intensität im Rahmen einer Größenordnung konstant bleibt. Oberhalb der Plateauregion nimmt die Intensität exponentiell ab. Die maximal erreichbare Ordnung der Harmonischen ergibt sich aus einer klassischen Rechnung für ein Elektron im Laserfeld. Bei einer gegebenen Laserintensität I und Wellenlänge λ ist die maximal erreichbare Photonenenergie E_c (cut-off) gegeben durch das Ionisationspotential des Atoms I_a und des ponderomotorischen Potentials U_p des oszillierenden Elektrons.

$$E_c \propto I_a + 3,17 U_p \quad U_p \propto I \lambda^2 \quad (2.1)$$

Der Ausdruck $3,17 U_p$ stellt die Oszillationsenergie dar, die das Elektron im Laserfeld aufnehmen kann. Bei der Rekombination der Elektrons mit dem Atomkern wird dann ein Photon mit der maximalen Energie von $I_a + U_p$ emittiert.

Erste Experimente bei der Erzeugung optischer Harmonischer an Festkörperoberflächen mit extrem intensiven ultrakurzen Laserimpulsen zeigten, neben der Höheren Harmonischen-Generation an Gasen einen alternativen Weg auf [19][20]. Bei der Wechselwirkung hochintensiver ultrakurzer Laserimpulse mit einer Festkörperoberfläche bildet sich ein dünnes Oberflächenplasma aus. Die Plasmadichte fällt über eine sehr kurze Distanz, von Bruchteilen der Laserwellenlänge, zum Vakuum hin ab. Bedingt durch die kurze Dauer des Anregimpulses, weist das Plasma extreme Eigenschaften wie Plasmadichte, Dichtegradienten und Lebensdauer auf. In der dünnen Plasmaschicht fällt die Elektronendichte von Werten des Festkörpers zum Vakuum steil ab [21]. Die Elektronen an der Plasma-Vakuum Grenze erfahren eine anharmonische Bewegung im anregenden Feld des Laserimpulses. Dies läßt die Produktion von geraden und ungeraden optischen Harmonischen erwarten. Experimente mit Femtosekunden [19][20] und Picosekunden Laserimpulsen [22] zeigen Harmonische hoher Ordnung.

Die Erzeugung von Harmonischen niedriger Ordnungen kann noch mit Hilfe der Störungstheorie beschrieben werden [23]. Störungstheoretische Ansätze versagen aber bei sehr hohen Laserintensitäten, wie sie mit Ultrakurzpuls Titan-Saphir Lasersystemen erreicht werden. Die elektrischen Feldstärken liegen bei erreichbaren Intensitäten von größer 10^{17} W/cm² im Bereich der atomaren Feldstärken.

Ein bereits in der Plasmaphysik etablierter Ansatz ist die Computersimulation mit dem 'Particle-In-Cell' Verfahren (PIC) [24]. Die Simulationen ergeben Informationen über die Absorption, Generation von hochenergetischen Elektronen, Wellenbrechen und das Verhalten der Harmonischen zu hohen Ordnungen und Laserintensitäten hin. Die Darstellungen der Plasmadichte zeigen, das starke Oszillationen der kritischen Oberfläche einen zentrale Rolle bei der Erzeugung Harmonischer einnehmen. Die Plasmaoszillationen werden durch ponderomotorische Kräfte angeregt. Der Nachteil der PIC-Simulationen besteht aber darin, daß sie nur eingeschränkte physikalische Interpretation zulassen. Das von BULANOV ET AL- [25] angeregte Modell des bewegten Spiegels wurde von LICHTERS ET AL- [6] und VON DER LINDE UND RZĄZEWSKI [26] aufgenommen und entwickelt. Die Modelle geben nicht nur eine Interpretation der Erzeugungsmechanismen, sondern erlauben auch Auswahlregeln für die Polarisierung der Harmonischen aufzustellen.

In diesem Kapitel sollen die verschiedenen Betrachtungsweisen vorgestellt werden, die die Erzeugung von Harmonischen bei Reflexion hochintensiver ultrakurzer Laserimpulse mit relativ einfachen Modellvorstellungen erklären .

1. Oszillierender Spiegel

Die Plasma-Vakuum Grenze stellt einen oszillierenden Spiegel dar. Die Erzeugung der Harmonischen wird über die Phasenmodulation des reflektierten Lichts an der oszillierenden Plasmadichtestufe interpretiert. Retardierungseffekte führen zu einer starken

Anharmonizität der Bewegung und darüber hinaus zu einem starken Anwachsen der Harmonischen im relativistischen Intensitätsbereich.

2. Dichtestufenmodell

Die Elektronendichte des Festkörpers wird vom einfallenden Laserfeld wie durch einen mechanischen Stempel zu Oszillationen angetrieben. Dabei bleibt die Form der Dichtestufe erhalten [25]. Das Plasma wird als kalte Flüssigkeit behandelt (Zwei-Flüssigkeitsmodell).

3. Einzelteilchennäherung

Die Bewegung eines Elektrons an der Plasma-Vakuum Grenze wird mathematisch beschrieben. Die Einzelteilchennäherung der Differentialgleichung wird numerisch gelöst (PIC-Simulation).

2.1.1 Das Modell des oszillierenden Spiegels

In diesem Modell werden folgende Voraussetzungen gemacht:

Die Lichtwelle der Frequenz ω_0 und des Wellenvektors k_0 fällt unter dem Winkel Θ aus dem Vakuum auf ein überkritisches Plasma. Die Plasmadichte ist im Halbraum $z < 0$ konstant und fällt für $z > 0$ zum Vakuum hin über eine Distanz vom Bruchteil einer Wellenlänge sehr steil ab. Der größte Teil des Lichts wird an der kritischen Plasmadichte reflektiert. Die Wechselwirkung des Lichts mit dem Plasma bewirkt, bedingt durch die elektromagnetischen Kräfte, eine periodische Bewegung des Plasmas. Durch die ultrakurze Zeitskala der Anregung sind die Ionen nicht in der Lage den Feldern zu folgen und können daher als feste positive Ladung betrachtet werden. Die Elektronen werden durch die elektromagnetischen Kräfte durch die Plasmagrenze hindurch mitgerissen und oszillieren im Lichtfeld. Unter Vernachlässigung von Elektronendichtefluktuationen oszilliert die überkritische Plasmagrenze im Lichtfeld, was gleichbedeutend mit einer reflektierenden Oberfläche ist.

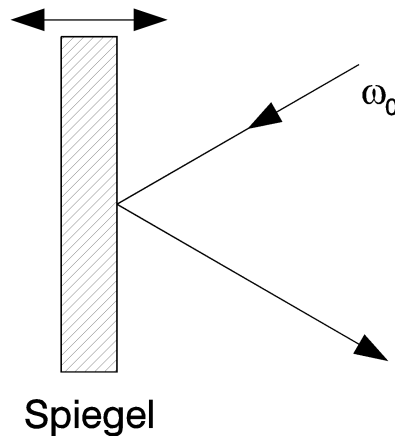


Abbildung 2.1: Schema des oszillierenden Spiegel Modells

Zur Verdeutlichung der physikalischen Mechanismen wird zuerst der nichtrelativistische

Fall betrachtet. Der Spiegel soll eine sinusförmige Schwingung mit der Frequenz ω_m , und der Amplitude s_0 , ausführen. Der Einfallswinkel des Lichts ist durch den Winkel Θ gegeben.

$$s(t) = (2\omega_0 s_0 / c) \cos \Theta \sin \omega_m t \quad (2.2)$$

Das elektrische Feld wird durch die Beziehung beschrieben:

$$E_R \propto e^{-i\omega_0 t} e^{-i\phi(t)} = e^{-i\omega_0 t} \sum_{n=-x}^{n=x} J_n(\chi) e^{-in\omega_m t} \quad (2.3)$$

Wobei $J_n(\chi)$ die Besselfunktion n-ter Ordnung ist.

$$\chi = (2\omega_0 s_0 / c) \cos \Theta \quad (2.4)$$

Die Lösung der Besselfunktion erhält man über die Jakobi-Entwicklung:

$$e^{-iz \sin \omega_m t} = \sum_{n=-x}^{n=x} J_n(\chi) e^{-in\omega_m t} \quad (2.5)$$

Die reflektierende Oberfläche beschreibt in Abhängigkeit von Polarisierung und Einfallswinkel des einfallenden Lichts eine periodische Bewegung. Die durch den oszillierenden Spiegel hervorgerufenen Phasenmodulationen lassen Frequenzbänder entstehen, die sich aus der Grundfrequenz der Lasers ω_0 und der Modulationsfrequenz der Spiegels ω_m zusammensetzen. Die Erzeugung von höheren Harmonischen an der Plasma-Vakuum Grenze kann als Phasenmodulation an einer periodisch bewegten reflektierenden Oberfläche interpretiert werden. Für sehr hohe Frequenzen, wie dies bei optischen Frequenzen der Fall ist, werden relativistische Effekte entscheidend.

Die reflektierende Oberfläche setzt sich aus oszillierenden Elektronen zusammen, weshalb die Betrachtung eines einzelnen Elektrons im elektromagnetischen Kraftfeld herangezogen wird. Die Bewegung eines Elektrons auf einer klassischen Bahn im Feld einer linear polarisierten Welle ist aus der Literatur bekannt [27]. Während einer Periodendauer der Welle durchläuft das Elektron die Bahn einer Acht, die in der Ebene liegt, die durch den Vektor des elektrischen Felds und dem Wellenvektor aufgespannt wird. In Abbildung 2.2 ist die Elektronenbahn schematisch dargestellt. In transversaler Richtung oszilliert das Elektron mit der Frequenz ω_0 , wogegen in longitudinaler Richtung die Frequenz $2\omega_0$ beträgt. In allgemeinen ist für schwache Felder die longitudinale Komponente klein und die transversale Komponente dominiert. Schwache Felder seien durch den relativistischen Parameter charakterisiert:

$$a_0 = \frac{eA_0}{mc^2} \quad (2.6)$$

A_0 stellt die Amplitude des Vektorpotentials der einfallenden Welle und mc^2 die Elektronenrestenergie dar. Für $a_0 \ll 1$ wird von schwachen Feldern ausgegangen.

Unter der Annahme, daß die kollektive Bewegung der Elektronen an der Plasma–Vakuum Grenze qualitativ die Bahn einer Acht beschreibt, d. h. es werden kollektive Phänomene vernachlässigt, können folgende Schlußfolgerungen aus dem Modell gezogen werden:

Generell muß zwischen p- und s-polarisiertem Licht unterschieden werden. In Abbildung 2.3 sind die Geometrien für beide Polarisierungen dargestellt.

p-polarisiertes Licht:

E-Feld und B-Feld stehen parallel bzw. senkrecht zur Einfallsebene. Die Elektronen bewegen sich in der Einfallsebene und es tritt die transversale sowie die longitudinale Komponente auf. Der reflektierende Elektronenspiegel oszilliert mit den Frequenzen ω_0 und $2\omega_0$. Somit können gerade und ungerade p-polarisierte Harmonische generiert werden.

s-polarisiertes Licht:

Das E-Feld liegt parallel zur Plasma–Vakuum Grenze. Die Elektronen bewegen sich senkrecht zur Einfallsebene. Die transversale Komponente liegt in der Ebene des Elektronenspiegels und tritt dadurch nicht auf. Nur die longitudinale Komponente läßt den Spiegel mit der Frequenz $2\omega_0$ oszillieren, sodaß nur ungerade s-polarisierte Harmonische auftreten.

Neben der Phasenmodulation der einfallenden Welle an einer reflektierenden Oberfläche existiert ein weiterer Mechanismus der Harmonischen Erzeugung. Die Ladungsdichte an der Plasma–Vakuumgrenze wird durch die elektromagnetischen Kräfte moduliert. Da die Ionen in der betrachteten Zeitskala als ortsfest definiert werden können, induziert die Bewegung der Elektronen ein elektrisches Dipolmoment. Für schräge Einfallswinkel variiert das Dipolmoment längs der Oberfläche (siehe Abbildung 2.4). Die Frequenz ist durch die parallele Komponente des Vektors der einfallenden Welle, $K_x = \omega_0/c \sin \Theta$

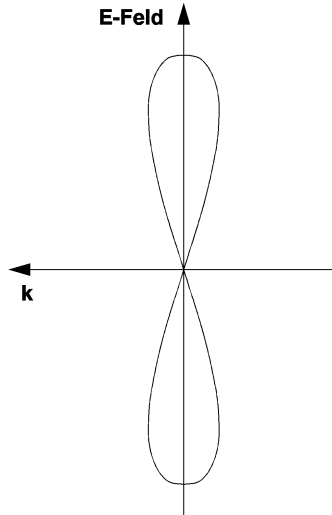


Abbildung 2.2: Bahn eines freien Elektrons in einer polarisierten ebenen Welle mit dem Wellenvektor \vec{k} . \vec{E} und \vec{B} stellen das elektrische bzw. magnetische Feld dar [27].

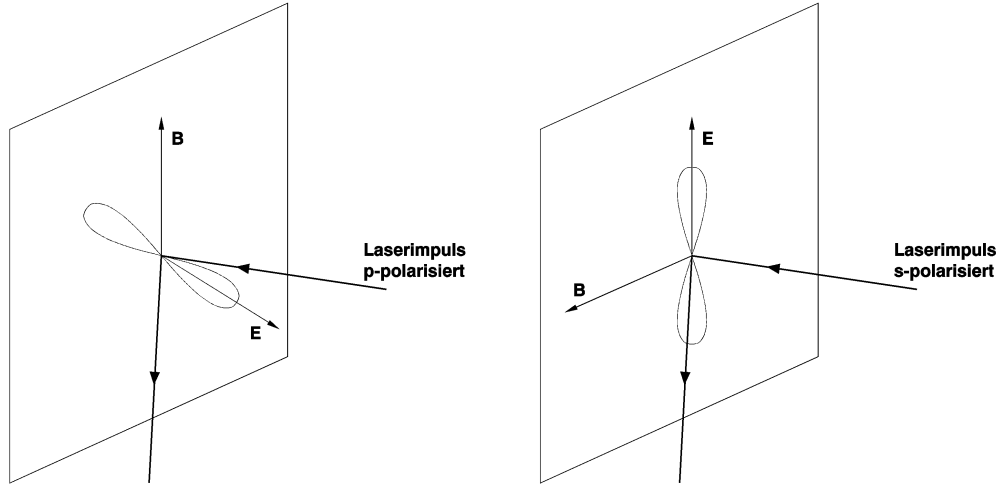


Abbildung 2.3: Bahn eines freien Elektrons in einer polarisierten ebenen Welle für s- und p-polarisiertes Licht mit dem Wellenvektor \vec{k} . \vec{E} und \vec{B} stellen das elektrische bzw. magnetische Feld dar.

gegeben.

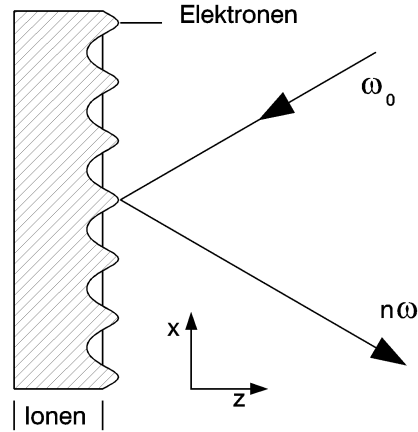


Abbildung 2.4: Ladungsverteilung an der Plasma-Vakuum Grenze.

Für s-polarisiertes einfallendes Licht wird die Ladungsverteilung an der Oberfläche mit der Frequenz $2\omega_0$ moduliert. Die Dipole emittieren p-polarisierte 2. Harmonische in spekulärer Richtung. Bei hohen Intensitäten der Fundamentalen, d. h. starker Modulation der Elektronendichte an der Oberfläche, treten p-polarisierte Harmonische gerader Ordnung auf. Eine Herleitung der Auswahlregeln für die Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen findet sich bei Lichters et al. [6]. Für schrägen Einfall der p-polarisierten fundamentalen Welle werden p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische erwartet. Für s-polarisiertes Licht ist die Situation komplexer. Dieser Fall lässt sich nicht durch Phasenmodulation am oszillierenden Spiegel erklären. Für schrägen Einfall werden gerade p-polarisierte und ungerade s-polarisierte Harmonische erzeugt.

Die Generation der p-polarisierten geraden Harmonischen läßt sich nur über die induzierten Oberflächendipole erklären. Bei sehr hohen Intensitäten wird die Auslenkung der reflektierenden Oberfläche groß und Retardierungseffekte haben einen bedeutenden Einfluß. Die Oberflächendipole emittieren ein Spektrum gerader höherer Harmonischer. Für senkrechten Einfall werden nur ungerade Harmonische erwartet. Die Auswahlregeln sind in Tabelle 2.1 zusammengefaßt.

	Harmonische s-polarisiert	Harmonische p-polarisiert
Fundamentale s-polarisiert	ungerade	gerade
Fundamentale p-polarisiert	nicht erlaubt	gerade & ungerade

Tabelle 2.1: Polarisations Auswahlregeln für die Harmonischen

Intensität der Harmonischen

Die maximale Auslenkung der Elektronen durch die elektromagnetischen Kräfte des Laserfeldes ist durch die rücktreibende elektrostatische Rückstellkraft des Plasmas begrenzt. Die Rückstellkraft setzt sich aus der Masse des Elektrons m_e und der Plasmafrequenz ω_p^2 zusammen. Für den nichtrelativistischen Fall kann der Ansatz für den harmonischen Oszillator mit der antreibenden elektromagnetischen Kraft F_{em} angewandt werden:

$$\frac{d}{dt^2}s + \omega_p^2 s = \frac{e}{m_e} F_{em} \quad (2.7)$$

Für die Oszillationsamplitude bei der Frequenz ω erhält man:

$$s(\omega) = \frac{e F_{em}(\omega)}{m(\omega_p^2 - \omega^2)} \quad (2.8)$$

Die effektive antreibende Kraft setzt sich aus einfallender und reflektierter Welle zusammen. Für s-polarisiertes Licht liegt der Vektor des elektrischen Feldes parallel zur Oberfläche (siehe Abbildung 2.3). Die Elektronen werden nur durch das magnetische Feld ausgelenkt. Der Ansatz für den harmonischen Oszillator lautet:

$$\frac{d}{dt^2}s + \omega_p^2 s = \frac{e}{m_e c} v_y B_x; \quad \frac{d}{dt^2}v_y = \frac{e}{m_e} E_y; \quad (2.9)$$

Wie bereits im vorherigen Absatz diskutiert wurde, oszilliert die Plasmaoberfläche mit der Frequenz 2ω . Für die Fourieramplitude der Oberfläche ergibt sich:

$$s(2\omega) = \frac{i}{(\omega_p^2 - 4\omega^2)\omega} \frac{e^2}{2m_e^2 c} E_y(\omega) B_y(\omega) \quad (2.10)$$

Die Fourieramplituden für $E_y(\omega)$ und $B_y(\omega)$ des elektrischen und magnetischen Felds an der Plasma-Vakuumgrenze erhält man über die Fresnel-Formeln und der dielektrischen Funktion für das Plasma:

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (2.11)$$

Für $\omega \ll \omega_p$ ergibt sich die Amplitude s_0 :

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_0^2 (\cos \Theta \sin \delta_s) \quad (2.12)$$

Wobei λ die Wellenlänge des anregenden Laserpulses, δ_s der Phasenwinkel des komplexen Fresnel-Koeffizienten für s-Polarisation und Θ der Einfallswinkel ist.

Für senkrechten Einfall reduziert sich der Ausdruck 2.12 auf die Form:

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^3}{\omega_p^3} a_0^2 \quad (2.13)$$

Für p-polarisiertes Licht tragen sowohl das elektrische wie auch das magnetische Feld zur Elektronenauslenkung bei. Die Amplitude der Bewegung, die durch das magnetische Feld hervorgerufen wird, kann durch die Gleichung 2.12 beschrieben werden. Hierzu muss nur der Phasenwinkel δ der Fresnel-Koeffizienten für p-Polarisation geändert werden. Damit ergibt sich für die Amplitude:

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_0^2 (\cos \Theta \sin \delta_p) \quad (2.14)$$

Bei dem elektrischen Feld besteht die effektive Auslenkkraft aus der Normalkomponente des Feldes an der Plasma-Vakuum Grenze. Löst man die Gleichung für den harmonischen Oszillator mit der entsprechenden Kraft, so ergibt sich der Ausdruck:

$$\frac{s_0}{\lambda} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega^2}{\omega_p^2} a_0 (2 \sin \Theta \cos \delta_p / 2) \quad (2.15)$$

Im nichtrelativistischen Fall ist die Antriebskraft, die durch das elektrische Feld hervorgerufen wird, proportional zum relativistischen Parameter a_0 . Für das magnetische Feld skaliert die Antriebskraft mit a_0^2 . Bei p-polarisiertem einfallenden Licht ist konstruktive Interferenz möglich. Das führt zu einem maximalen elektrischen Feld von $2E_0$ im Fall vom streifenden Einfall.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Elektronenamplitude an der Plasma-Vakuum Grenze von folgenden Parametern abhängig ist:

- Dem relativistische Parameter a_0
- Dem Frequenzverhältnis ω/ω_p
- Der Interferenz zwischen einfallender und reflektierter Laserwelle.

Im relativistischen Bereich mit $a_0 \gg 1$, was Laserintensitäten von $I\lambda^2 \approx 10^{18} \text{W/cm}^2 \mu\text{m}^2$ voraussetzt, steigen Intensität und Ordnung der Harmonischen stark an. Neuere Experimente zeigen jedoch bisher ein gegenteiliges Verhalten. Das Frequenzverhältnis ω/ω_p hat für typische Festkörperdichten und eine Laserwellenlänge von $\lambda \approx 1 \mu\text{m}$ etwa den Wert von 10. Wie PIC-Simulationen von LICHTERS ET AL- [6] zeigen, wird die maximale Elektronenamplitude bei $\omega/\omega_p = 2$ erreicht. Für die Praxis bedeutet dies, daß ein leicht überkritisches Plasma erzeugt werden muß, um eine maximale Anzahl Harmonischer zu erzeugen. Man kann von einem "weichen Plasma" sprechen, das heißt, die elektrostatischen Rückstellkräfte sind kleiner als bei einem Plasma mit Festkörperdichte. Ein weiterer Grund für das Verhalten der Harmonischen können Instabilitäten des Plasmas bei hohen Lichtintensitäten sein. Der Elektronenspiegel wird bei hohen Laserintensitäten zerstört und es kann keine konstruktive Interferenz mehr stattfinden.

2.1.2 Das Dichtestufenmodell

Bei der Wechselwirkung eines hochintensiven Laserpulses mit einem Festkörper kann davon ausgegangen werden, daß die Festkörperoberfläche schon in der Anstiegsflanke des Pulses nahezu vollständig ionisiert wird. In der extrem kurzen Zeitskala können die Ionen aufgrund ihrer großen Masse als beinahe unbeweglich angesehen werden. Der größte Teil des Laserpulses zeigt eine Wechselwirkung mit den Elektronen, die vom einfallenden Laserfeld zu Oszillationen angetrieben werden. In dem Modell werden Prozesse wie Ionisation, Rekombination und Anregung nicht berücksichtigt. Das Elektronendichteprofil wird als Dichtestufe betrachtet [25]. Ein Maß für die Steilheit der Dichtestufe ist die Debye-Länge :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{k_B T}{2m_e c^2}}. \quad (2.16)$$

Bei Laserintensitäten von $10^{17} - 10^{19} \text{W/cm}^2$ ist λ_D klein gegenüber der Oszillationsamplitude Z , sodaß die Annahme des Stufenprofils gerechtfertigt ist.

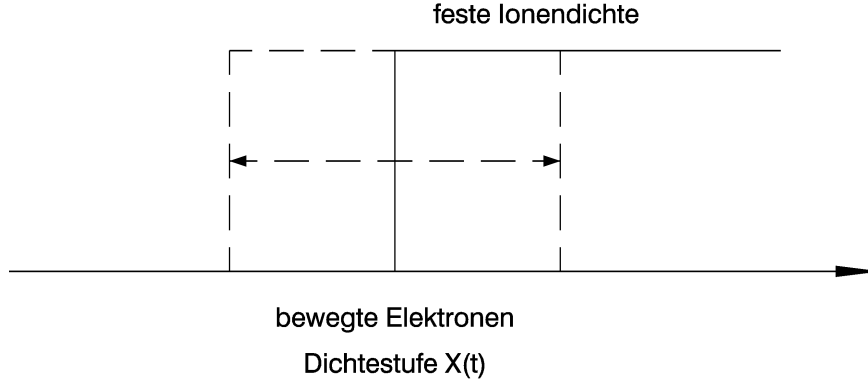


Abbildung 2.5: Schema des Dichtestufe Modells

In Abbildung 2.5 ist die Situation skizziert. Die einlaufende Welle trifft auf die Elektronendichtestufe und wird mit einem Phasensprung reflektiert. Einlaufende und auslaufende Welle bilden eine quasi stehende Welle aus. Die Annahme vernachlässigt die Tatsachen, daß sich streng genommen auf der Vakuumseite keine stehende Welle bilden könnte, da die Dichtestufe ihrerseits eine Bewegung ausführt. Es tritt aber trotzdem eine Überlagerung von einlaufender und reflektierter Welle auf, da die Oberflächenbewegung klein gegenüber der Laserwellenlänge ist. Aufgrund der hohen Dichte des Plasmas wird das Feld im Plasma exponentiell gedämpft.

Die vom Laserfeld angetriebenen Elektronen oszillieren mit der Amplitude Z und dem Impuls $\vec{p} = \frac{d}{dt}(m\vec{v})$ um die Nullage. Der Kräfteansatz für die Bewegung lautet:

$$\frac{d}{dt}\vec{p} = \vec{F}_R + \vec{F}_D + \vec{F}_L \quad (2.17)$$

Der Vektor \vec{F}_R stellt die rücktreibende Kraft, der Vektor \vec{F}_D die Dämpfung dar und der Vektor \vec{F}_L stellt die antreibende Kraft dar. Werden die Elektronen in Bezug auf die Ionen ausgelenkt, so ist dies gleichbedeutend mit einer Ladungstrennung und damit tritt eine rückstellende Kraft auf. Mit Hilfe des Gaußs Gesetzes erhält man für \vec{F}_R :

$$\vec{F}_R = -m\omega_p^2 z \vec{e}_z \quad (2.18)$$

Die rückstellende Kraft wirkt proportional zur Auslenkung in z -Richtung. Dies gilt wiederum nur für den Fall, daß die Skintiefe größer als die Oszillationsamplitude ist ($d \geq Z$), wodurch der Beitrag der Elektronen im Ionenprofil dominiert.

Setzt man eine kollektive Bewegung der Elektronen voraus, so treten Elektron-Elektron Stöße nicht auf. Für die Dämpfung werden deshalb nur Stöße von Elektronen und Ionen im Plasma betrachtet. Bei einer Abschätzung für ein $\frac{n}{n_c}$ -fach überkritisches Plasma ergibt sich eine Stoßfrequenz $\nu_{EI} \ll \frac{n}{n_c}\omega \approx 10^{16} - 10^{17} \text{ s}^{-1}$. Das Plasma wird als quasi stoßfrei

angesehen. Die Dämpfung ist deshalb gegenüber der rücktreibenden Kraft zu vernachlässigen. Die treibende Kraft des Laserfeldes kann durch die Lorentzkraft ausgedrückt werden:

$$\vec{F}_L = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (2.19)$$

Die elektrischen und magnetischen Felder der Lichtwelle besitzen eine harmonische Zeitabhängigkeit. Die Elektronendichte verhält sich wie ein angetriebener harmonischer Oszillator mit der Bewegungsgleichung:

$$\frac{d}{dt}(m\vec{v}) + m\omega_p^2 z \vec{e}_z = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (2.20)$$

Nichtrelativistischer Fall ($v \ll c$)

Betrachtet man eine in z-Richtung einlaufende Welle, d. h. der Wellenvektor \vec{k} ist parallel zu \vec{e}_z , steht das elektrische Feld \vec{E} senkrecht zu \vec{k} . Im nichtrelativistischen Fall, also $v \ll c$ oder anders ausgedrückt der relativistische Parameter $a_0 \ll 1$ liefert der Term $\vec{v} \times \vec{B}$ keinen nennenswerten Beitrag. Die Elektronen werden transversal beschleunigt, d. h. $\vec{v} \propto \vec{E}$. Aus den Maxwell-Gleichungen folgt für ebene Wellen, daß erstens $\vec{B} \perp \vec{E}$; zweitens \vec{B} ist in Phase mit \vec{E} und drittens die Beträge von \vec{B} und \vec{E} sind für das Vakuum proportional zueinander [28]. Der Pointing-Vektor gibt die Energieflußdichte an und skaliert mit E^2 oder mit $I\lambda^2$. Da der Pointing-Vektor sein Vorzeichen nicht wechseln kann und der $\vec{v} \times \vec{B}$ -Term in z-Richtung weist, ist die Schwingung nicht notwendigerweise symmetrisch um $z = 0$. Das elektrische Feld oszilliert mit E^2 , was gleichbedeutend zu einer periodischen Kraft mit der Eigenfrequenz 2ω ist. Die Nichtlinearität des $\vec{v} \times \vec{B}$ -Terms in 2.20 führt zu einer anharmonischen Oszillation der Elektronen. Führt man eine Fourierzerlegung durch, so erhält man Vielfache der Lasergrundfrequenz ω_0 . Harmonische treten also schon bei der Betrachtung von ebenen Wellen im nichtrelativistischen Intensitätsbereich auf. Der Impulsverlauf des Lasers wird dabei noch nicht berücksichtigt.

Relativistischer Fall ($v \approx c$)

Im relativistischen Fall ($v \approx c$) muß in Gleichung 2.20 der Impuls relativistisch betrachtet werden. Der zusätzliche γ -Term führt eine weitere Nichtlinearität ein ($\vec{p} = m\gamma\vec{v}$). Die Bewegung der Elektronendichte wird mit zunehmender Intensität der einfallenden Welle anharmonischer. Im relativistischen Intensitätsbereich tritt dieser zusätzliche Erzeugungsmechanismus auf, der eine Zunahme der Harmonischen erwarten läßt. Physikalisch gesehen nimmt die Masse der Elektronen zu, d. h. die Elektronen werden "schwerer", was wiederum Einfluß auf den anharmonischen Oszillator hat.

2.1.3 Hydrodynamisches Zwei-Flüssigkeitsmodell

Ein Modell, was die selbst-konsistenten kinetischen PIC-Simulationen interpretiert, ist die Darstellung des Plasmas als kalte Flüssigkeit. Das Plasma wird als kalte Elektronen-Flüssigkeit mit einem statischen Ionenanteil betrachtet. In diesem Bild wird jegliche Temperaturabhängigkeit vernachlässigt und mit einer kollektiven Elektronengeschwindigkeit \vec{v} gerechnet. Das Laserfeld wird als ebene linear polarisierte Welle mit einem harmonisch zeitabhängigen Vektorpotential behandelt. Das elektrische Feld \vec{E} und das magnetische Feld \vec{B} werden in quasistatischer Näherung der Maxwell-Gleichungen über das Vektorpotential \vec{A} und das skalare Potential Φ definiert [29]:

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}\Phi - \frac{\partial\vec{A}}{\partial t}, \quad \vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A} \quad (2.21)$$

In der Coulomb-Eichung $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$ ergeben sich aus den Maxwell-Gleichungen die entkoppelten Differentialgleichungen; die Poisson- und die Wellengleichung.

$$\Delta\Phi = -\frac{1}{\epsilon_0}\rho, \quad \square\vec{A} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2}\vec{j}_t \quad (2.22)$$

Das Vektorpotential \vec{A} und das skalare Potential Φ sind damit zeit- und ortsabhängig, was durch den Laplace- ($\Delta = \vec{\nabla}^2$) und den d'Alembert-Operator ($\square = \Delta - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}$) zum Ausdruck kommt. Die relativistische Bewegung der Elektronen der Masse m_e und der Ladung q wird durch die Gleichung 2.23 beschrieben:

$$m_e d_t(\gamma\vec{v}) = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad \gamma = \sqrt{\frac{1}{1 - (v/c)^2}} \quad (2.23)$$

Der Ausdruck $d_t = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla}$ stellt den Differentialoperator und die Gleichung 2.23 stellt eine Flüssigkeitsgleichung dar. Die Dichte ρ wird hier durch eine Geschwindigkeitsverteilung $\vec{v}(\vec{r}, t)$ ausgedrückt.

Eine Lösung der Gleichungen ist über zwei verschiedene Wege möglich. Erstens durch eine kinetische Simulation mit dem PIC-Verfahren oder zweitens analytisch über das Modell des kalten relativistischen Plasmas.

Bei beiden Lösungswegen muß für schrägen Einfall des Laserpulses eine Lorentz Transformation vom Laborsystem L in das Bezugssystem M vorgenommen werden, das sich parallel zur Oberfläche bewegt. Das Plasma bewegt sich in diesem Bezugssystem in x -Richtung und der Laserimpuls fällt senkrecht ein. Durch die Transformation wird das Problem auf eine Dimension reduziert. Die Transformation ist in Abbildung 2.6 dargestellt.

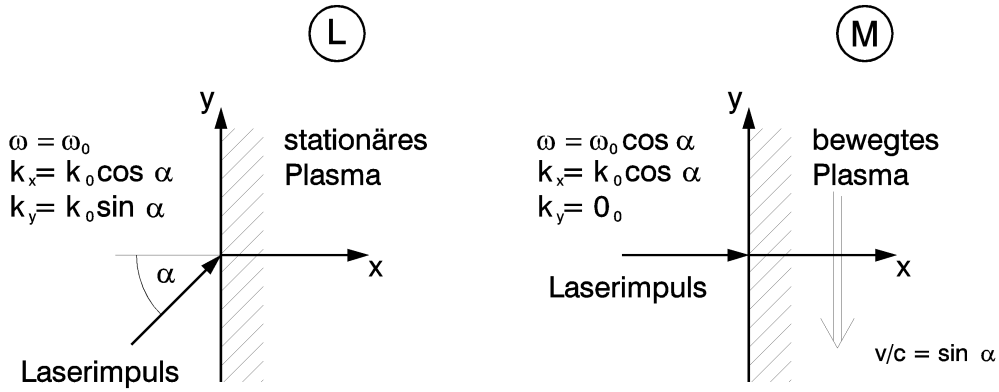


Abbildung 2.6: a) Laborsystem L mit schrägem Einfall des Laserimpuls auf ein ruhendes Plasma und b) bewegtes System M mit senkrecht einfallenden Laserimpuls und parallel zur Oberfläche bewegten Plasma.

PIC-Simulationsrechnungen

In den kinetischen PIC-Rechnungen werden im Phasenraum mehrere Teilchen zu Makropartikeln mit drei Geschwindigkeitskomponenten zusammengefaßt. Die Bewegung der Elektronen induziert zeitlich und örtlich variierende Strom- und Ladungsdichten, die wiederum Quellen für Felder darstellen, in denen sich die Elektronen bewegen. Die Simulation diskretisiert Ladungs- und Stromdichten räumlich in einem eindimensionalen Gitter. Die Bewegung der einzelnen Makropartikel wird pro Zeitschritt über die relativistische Bewegungsgleichung berechnet und mit den Ladungs- und Stromdichten wird die Poisson- und die Wellengleichung numerisch gelöst. Die Ergebnisse benutzt man dann zur Berechnung der aktuellen Felder für den nächsten Zeitschritt. Die Anzahl der Zellen wird durch die Rechenleistung der zur Verfügung stehenden Computer begrenzt. Für eine typische Simulation (siehe [6]) benötigt ein IBM RISC/6000 Modell 250 Computer ca. 24 Stunden. Die Simulationen liefern im direkten Vergleich mit den Experimenten gute Ergebnisse. Ausführliche Beschreibungen finden sich in den Arbeiten von LICHTERS ET AL- [6] und GIBBON [5].

2.1.4 Ergebnisse der Modelle

Oszillierender Spiegel

Das Laserlicht induziert starke Oszillationen der Elektronendichte an der Oberfläche, die als bewegter Spiegel angesehen werden können. Die Harmonischen werden als Reflexion des einfallenden Lichts an dem Spiegel unter Berücksichtigung retardistischer und relativistischer Effekte betrachtet. Das Modell liefert eine quantitative Reproduktion der PIC-Simulationen und liefert die Auswahlregeln für die Harmonischenerzeugung mit polarisiertem Licht.

- S-polarisiertes Licht erzeugt s-polarisierte ungerade Harmonische und gerade p-polarisierte Harmonische.

- P-polarisiertes Licht erzeugt p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische aber keine s-polarisierten Harmonischen.
- Das Maximum der Erzeugung von Harmonischen liegt bei Intensitäten des anregenden Lichts im relativistischen Bereich ($a_0 \gg 1$). Die Amplitude des oszillierenden Spiegels (s_0/λ) erreicht dann die relativistische Grenze.
- Der Frequenzfaktor ω/ω_p ist ein Maß für die Rückstellkraft des Elektronenspiegels. Die maximale Intensität der Harmonischen ist bei leicht überkritischen Plasma zu erwarten. Bei Plasmen mit nahezu Festkörperdichte sind die Rückstellkräfte sehr hoch, so daß die Amplitude des oszillierenden Spiegels klein ist.

Dichtestufenmodell

Das Flüssigkeitsmodell des kalten Plasmas liefert Ergebnisse für eine Plasmadichtestufe für s- und p-polarisiertes Licht. Durch das Modell werden die Resultate der PIC-Simulationen interpretiert und durch Auswahlregeln für polarisiertes Licht ergänzt. Die Simulationen sind für planare Geometrien gültig.

- S-polarisiertes Licht erzeugt s-polarisierte ungerade Harmonische und gerade p-polarisierte Harmonische.
- P-polarisiertes Licht erzeugt p-polarisierte gerade und ungerade Harmonische aber keine s-polarisierte Harmonische.
- Zirkular polarisiertes Licht erzeugt keine Harmonische.

Particle-In-Cell Simulationen

Die Simulationen zeigen Spektren der Harmonischen bei stufenförmigen Dichteprofilen für senkrechten und schrägen Einfall von s- und p-polarisiertem Licht.

- Die Intensitäten der Harmonischen steigen mit Erreichen des relativistischen Intensitätsbereich von $10^{18} \text{ W/cm}^2 \mu\text{m}^2$ stark an.
- Wird die Plasmadichte verringert, so erreicht die Harmonischenerzeugung bei $\omega_p = 2\omega_0$ ein Maximum, d. h. der oszillierende Anteil der ponderomotorischen Kraft ist in Resonanz mit der Plasmafrequenz.
- Für s-polarisiertes Licht fallen die Intensitäten der Harmonischen monoton mit dem Einfallswinkel α ab.
- Für p-polarisiertes Licht existiert ein optimaler Einfallswinkel α , da die Kombination von der Normalkomponente des elektrischen Feldes und der ponderomotorischen Kraft ein Maximum erreichen. Der Winkel ist abhängig von der Intensität des anregenden Laserimpulses und von der Plasmadichte.
Als Beispiel sei genannt: $\alpha \simeq 30^\circ$ mit $a_0 = 0,5$ und $\frac{n_0}{n_c} = 4$.
- Rampenförmige Dichteprofile erklären die hohen Intensitäten bei der Erzeugung der Harmonischen mit Pikosekunden- und Nanosekunden-Laserimpulsen [22][30].

2.2 Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen

Durch die Entwicklung von neuen Ultrakurzpuls-Lasern sind Impulsdauern bis hinunter zu 10 fs und Impulsenergien bis zu 2 J realisierbar geworden. Mit diesen Femtosekunden-Laserimpulsen lassen sich Spitzenintensitäten im Fokus von bis zu 10^{21} W/cm² erreichen. Fokussiert man einen Laserimpuls mit einer derart hohen Impulsleistung auf eine Festkörperoberfläche, so entsteht ein Mikroplasma mit extremen Eigenschaften [31]. Das Plasma kann mit dem üblichen Zwei-Flüssigkeiten-Modell bestehend aus Elektronen und Ionen beschrieben werden, jedoch werden seine Eigenschaften nicht primär durch Temperatur und Dichte des Plasmas, sondern durch das Laserfeld bestimmt. Unter diesen Bedingungen können die konventionellen Regeln der Plasmaphysik nicht angewandt werden. In den letzten Jahren wurden neue Ansätze zur Beschreibung der Ultrakurzpuls Laserplasmen entwickelt [32][33]. Physikalische Prozesse wie Ionisation, Propagation, Generation von Plasmawellen, thermische sowie hydrodynamische Entwicklung des Targetmaterials sind abhängig von den Eigenschaften der Laserimpulse. Aufgrund der fortschreitenden Laserentwicklung hin zu kürzeren Impulsen und höheren Intensitäten wechselt das Interesse der Forschung von der atomaren Physik und den linearen Plasmawellen hin zu extrem nichtlinearen kollektiven Phänomenen. Eine Übersicht der grundlegenden physikalischen Prozesse der Ultrakurzpuls Plasmaphysik findet sich in dem Artikel von GIBBON ET AL- [24].

Die Strahlung aus Ultrakurzzeit Laserplasmen überstreicht einen sehr weiten Bereich des elektromagnetischen Spektrums. Insbesondere der Bereich des sichtbaren Lichts und der ultravioletten Strahlung ist für die Plasmadiagnose von Bedeutung. Die Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen wird seit einigen Jahren intensiv untersucht [34]. Neben der Plasmadiagnostik ist das Mikroplasma als Strahlungsquelle aufgrund des Erzeugungsmechanismus interessant. Innerhalb der kurzen Zeitskala der Anregung können die Ionen des Festkörpers nicht expandieren, sodaß Plasmadichten bis hin zur Festkörperdichte entstehen. Die Elektronen nehmen im Laserfeld Energie auf, die sie durch Wechselwirkungsprozesse abgeben können. Durch Stöße der energiereichen Elektronen mit Ionen wird Linienstrahlung sowie Kontinuumsstrahlung erzeugt. Die Linienstrahlung resultiert aus Übergängen der diskreten Energieniveaus der Ionen und ist somit die für das verwendete Targetmaterial charakteristische Strahlung. Die Kontinuumsstrahlung ist Rekombinationsstrahlung von Elektronen und Ionen sowie Bremsstrahlung im Festkörpermateriale. Mikroplasmen sind Strahlungsquellen, die in einem weiten Bereich des kurzwelligen Spektrums, bis hin zu MeV-Röntgenstrahlung, emittieren [34, 13].

Die Dauer der Röntgenemission ist durch die Impulsdauer des Lasers und die Abkühlzeit des Plasmas bestimmt, da die Elektronen nur einen geringen Teil ihrer Energie durch Stöße mit den Ionen verlieren [35]. Die beiden wichtigsten Prozesse für das Abkühlen des Plasmas sind zum einen die elektronische Wärmeleitung, d. h. der Energietransport vom heißen Plasma in das kalte Material, und zum anderen die Plasmaexpansion ins Vakuum aufgrund der extremen Dichte- und Druckgradienten. Da bis heute Methoden zur Messung der Impulsdauer im Röntgenbereich mit Femtosekunden Zeitauflösung fehlen, oder einen sehr hohen experimentellen Aufwand erfordern [10], kann die Röntgenimpulsdauer nur mit dem bisher erreichten Auflösungsvermögen der schnellsten elektronischen

Streakkameras von etwa 0,5 ps, abgeschätzt werden [14]. Die Röntgenimpulsdauer liegt damit aber deutlich (etwa zwei Größenordnungen) unterhalb der, mit bisherigen Methoden, wie z.B. gepulsten Röntgenquellen oder Synchrotronstrahlung, erreichten minimalen Impulsdauer.

Der optische Fokus des Laserimpulses und die Ausdehnung des Röntgenemissionsgebiets sind etwa gleich groß [15, 36]. Zukünftige mögliche Anwendungen, wie z.B. die zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie, machen es erforderlich die Strahlung zu fokussieren. Für den Strahlungsbereich bis zu einer Wellenlänge von einigen nm werden als optische Komponenten Multilayerspiegel und Zonenplatten eingesetzt [37]. Für kurzwellige Strahlung werden Kristalle als optische Komponenten eingesetzt. Insbesondere zweidimensional gebogene Kristalle ermöglichen eine lichtstarke Fokussierung der ultrakurzen Röntgenimpulse. Auf die Fokussierung der Röntgenstrahlung wird in Kapitel 3 ausführlich eingegangen.

3. Experimentelle Grundlagen

In diesem Kapitel werden die apparativen Systeme vorgestellt, die zur Erzeugung und Detektion der Strahlung verwendet wurden. Aufgrund der Komplexität der verwendeten Lasersysteme wird nur eine knappe Beschreibung der Leistungsmerkmale gegeben. Für weitere Informationen sei auf die angegebenen Arbeiten verwiesen. Bei der Detektion der VUV-Strahlung und der Analyse der Röntgenstrahlung mußten neue Wege eingeschlagen werden. Insbesondere wird die spezielle VUV-Meßtechnik mit CCD-Detektoren beschrieben. Aufgrund der experimentellen Bedingungen konnte kein kommerzielles Spektrometer eingesetzt werden. Als ein großes Problem stellte sich das starke Streulicht des Lasers in der Experimentierkammer dar. Da es nur sehr eingeschränkt möglich ist spektrale Filter zur Unterdrückung des Streulichts einzusetzen, wurde ein neuartiger VUV-Meßplatz aufgebaut. Die spektrale Analyse wurde mit Kristallspektrometern und Filterkombinationen durchgeführt. Im Hinblick auf die Anwendung der Strahlung aus Ultrakurzzeit Laserplasmen wurde mit gebogenen Kristallen die Fokussierbarkeit der Röntgenstrahlung nachgewiesen. In den folgenden Abschnitten wird auf diese beiden apparativen Systeme intensiver eingegangen.

3.1 Ultrakurzzeit Lasersysteme

Die Experimente zur Röntgenemission aus Plasma-Vakuum Grenzflächen wurden am Institut für Laser- und Plasmaphysik in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. D. von der Linde durchgeführt. Als Strahlquelle diente ein in der Arbeitsgruppe aufgebauter passivmodengekoppelter CPM-Farbstofflaser (Colliding-Pulse-Modelocking) benutzt. Die Wellenlänge der Laserimpulse liegt bei $\lambda = 625$ nm bei einer maximalen Impuls-Energie von 5 mJ und einer Impulsdauer von $\tau = 140$ fs der Autokorrelationsfunktion. Eine Beschreibung des mehrstufigen Lasersystems findet sich in [38]. Ein wichtiger Parameter von fs-Laserimpulsen ist das zeitliche und räumliche Intensitätsprofil. Insbesondere das Verhältnis von Spitzenintensität zu Impulsuntergrund ist bei fokussierten Intensitäten von bis zu 10^{16} W/cm² entscheidend. Durch einen zeitlichen Impulsuntergrund wird bei diesen Intensitäten ein Vorplasma generiert, sodaß man nicht mehr von einem fs-Experiment sprechen kann. Eine Charakterisierung der Laserparameter findet sich in [23].

Die Experimente zur Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen wurden an den Titan-Saphir-Lasersystemen am Laboratoire d'Optique Appliquée der École Nationale Supérieure de Techniques Avancées an der École Polytechnique in Palaiseau, Frankreich, durchgeführt. Die Experimente wurden an zwei Laseranlagen durchgeführt, die sich durch Impulsdauer sowie maximale Impulsenergie unterscheiden. Die Laser sind nach den Farben der Labors benannt. Der Oszillator der Laseranlage im "Salle Verte" besteht aus einem kommerziellen Titan-Saphir-Laser. Der Impuls wird mit Hilfe der CPA-Technik (Chirped-Pulse-Amplification) [39] auf eine maximale Energie von $E_{max} = 60$ mJ verstärkt. Die Impulsdauer der Autokorrelationsfunktion beträgt $\tau = 130$ fs bei einer Zentralwellenlänge des Lasers von 800 nm. Der Laser wird im Rahmen von Forschungsprojekten von mehreren europäischen Forschungsgruppen genutzt.

Eine Beschreibung der Anlage und eine Charakterisierung der Impulsparameter findet sich in [40, 41]. Der Laser im “Salle Jaune“ ist eine Eigenentwicklung der ENSTA, die auf den Erfahrungen mit dem Laser im “Salle Verte“ beruhen. Ziel war es in der letzten Ausbaustufe ein System mit einer maximalen Impulsenergie von 1 J bei einer Impulsdauer von 30 fs zu erhalten. Zum Zeitpunkt der Experimente war die Entwicklung noch nicht abgeschlossen. Erreichbare Impulsenergien lagen bei 600 mJ und die Impulsdauer bei 60 fs bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm. Bei der Erzeugung von Harmonischen an Oberflächenplasma ist das Intensitäts-Kontrastverhältnis der Laserimpulse zum Untergrund oder zu Impulsvorläufern von entscheidender Bedeutung. Wie im Kapitel 2 erläutert wird, ist für den Erzeugungsprozeß ein steiler Plasma-Vakuum Dichtegradient erforderlich. Durch einen zeitlichen Impulsvorläufer wird bei entsprechend hoher Intensität ein Vorplasma erzeugt. Der Hauptimpuls trifft dann nicht mehr auf eine Festkörperoberfläche, sondern auf ein expandierendes Plasma [42].

3.2 VUV–Spektrometer

Betrachtet man die Wellenlängen der Harmonischen so wird deutlich, daß bei einer Lasergrundwellenlänge von 800 nm schon ab der 3. Harmonischen der ultraviolette Strahlungsbereich erreicht ist. Unterhalb einer Wellenlänge von 200 nm nimmt die Absorption in Luft stark zu und man spricht von vakuum-ultraviolettem Strahlungsbereich (VUV-Strahlung) [43].

In Abbildung 3.1 ist die Transmission eines Photons in Luft für die im Experiment typische Weglänge und Druck im Feinvakuum abgebildet. Die höchste Absorption findet im Bereich um 60 nm statt. Da aber die Werte für die Transmission über 90% liegen, sind die Vakuumbedingungen ausreichend für die im Experiment erreichten Weglängen der Photonen bis zum Detektor. Durch die hohen Absorptionskoeffizienten in jeglichen Materialien kann im VUV-Bereich nur reflektive Optik zum Einsatz kommen. Die Reflexionswerte für die besten optischen Beschichtungen und normale Einfallswinkel liegen im Wellenlängenbereich von 50 nm-100 nm zwischen 10%-20%. Spektrometer mit mehreren Spiegeln scheiden aufgrund der geringen Transmission im VUV aus. Die typischen Beugungseffizienzen von VUV-Gittern liegen zwischen 2% und 15%. Ein ideales Spektrometer für die spektrale und quantitative Analyse der höheren Harmonischen sollte folgende Eigenschaften besitzen:

- hohe Transmission
- gute Abbildungseigenschaften
- hohe Beugungseffizienz
- großer Öffnungswinkel
- großer Spektralbereich
- hohe Auflösung

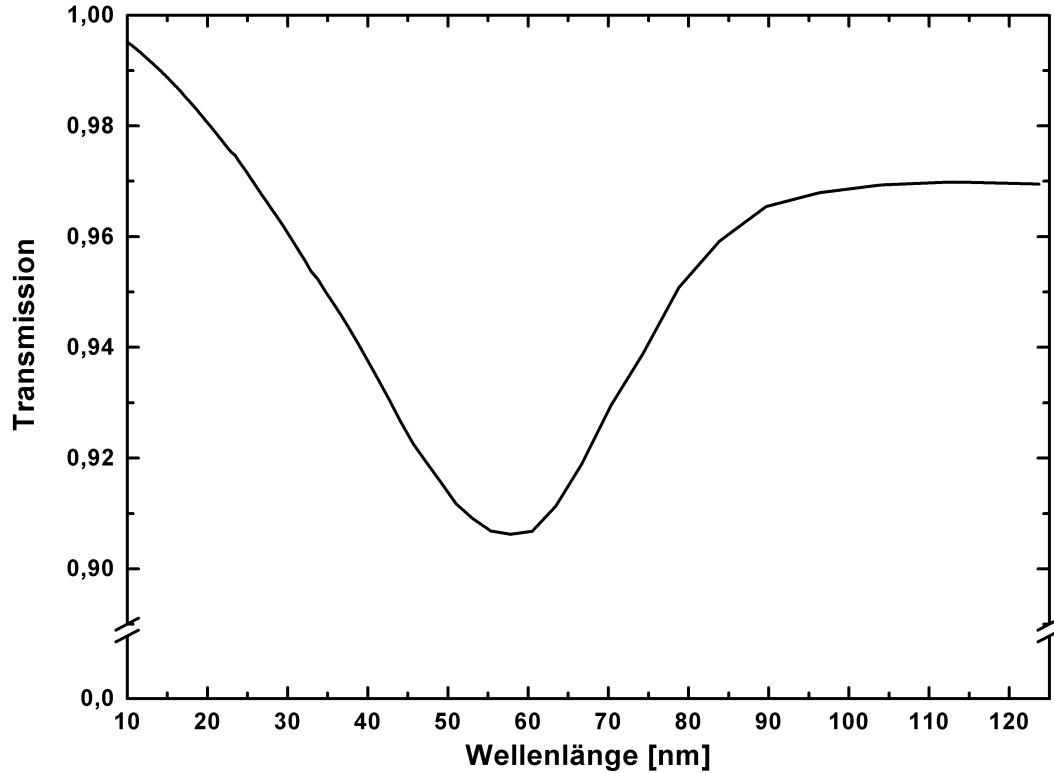


Abbildung 3.1: Transmission eines Photons in Luft bei einer Weglänge von 100 cm und 10^{-3} mbar Restatmosphäre [44]

- hohe Empfindlichkeit des Detektors

Bei den Experimenten wurden zwei verschiedene Vakuum-Toroidgitter Spektrometer eingesetzt. Die ersten Meßreihen wurden mit einem zum Spektrometer umgebauten VUV-Monochromator der Firma Jobin Yvon durchgeführt. Das toroidale Gitter ist für den Wellenlängenbereich 15 nm bis 150 nm geeignet. Das Platin beschichtete Gitter hat eine Strichzahl von 550 Linien/mm und eine mittlere Auflösung von 0,57 nm. Durch den Einfallswinkel von 71° , einen Arbeitsabstand von 320 mm und die Gitterabmessungen von 30 mm×30 mm ergibt sich ein Raumwinkel von $4,6 \cdot 10^{-4}$ sr. Durch die fokussierende Eigenschaft eines konkaven Spiegels und die dispersive Funktion des Gitters sind zwei optische Elemente in einem Bauteil vereint. Gegenüber einem Spektrometer mit planem Gitter und fokussierenden Spiegel existiert nur eine reflektierende Oberfläche. Das Toroidgitter Spektrometer hat gute Transmissionsseigenschaften bei gleichzeitig fokussierender Wirkung. Aufgrund des ursprünglichen Einsatzzwecks in einem Monochromator ist die Abbildung der Quelle nur in einem Punkt stigmatisch. Bei einem ausgedehnten Spektrum treten recht und links des Fokuspunktes Verzeichnungen der punktförmigen Quelle auf. Damit variiert auch die spektrale Auflösung, die zu den Rändern des Spektrum hin abnimmt. Das Gitter mußte für die Messung des gesamten Harmonischen Spektrums gedreht werden um in einem kleinen Spektralbereich noch eine vertretbar gute Auflösung zu erreichen. Für ein komplettes Spektrum waren mehrere Einstellungen des

Gitters nötig. Abbildung 3.3 und 3.2 zeigen das Argon-Spektrum einer Hohlkathodenentladungsquelle, ein als Kalibrierquelle von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) verwendetes Transferstrahlungsnormale. Als Detektor wurde eine rückseitig gedünnte CCD-Kamera verwendet. Es sei auf den zunehmenden Astigmatismus zu den Rändern des Spektrums hingewiesen.

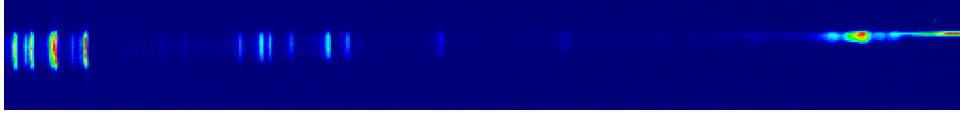


Abbildung 3.2: 2D-Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle. Aufgenommen mit dem VUV-Toroid-Gitter Monochromator. Arbeitspunkt der Hohlkathodenentladungsquelle: 500 V, 1 A, Arbeitsgas: Argon

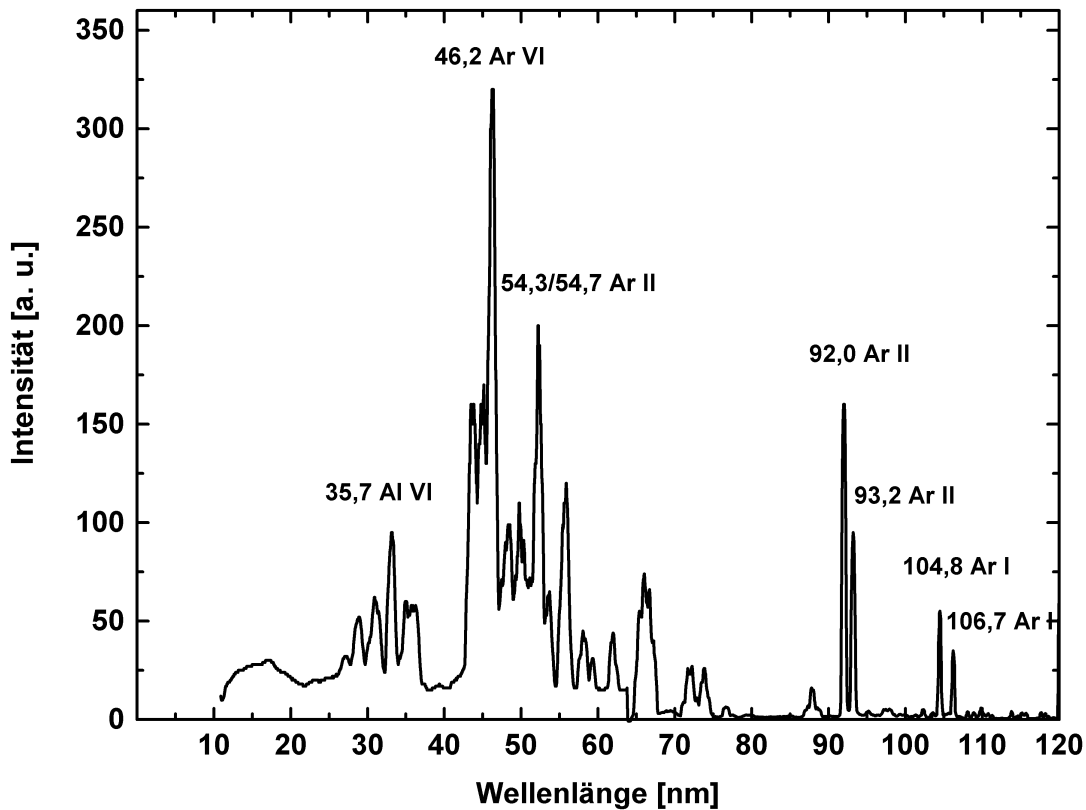


Abbildung 3.3: Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle. Aufgenommen mit dem VUV-Toroid-Gitter Monochromator. Arbeitspunkt der Hohlkathodenentladungsquelle: 500 V, 1 A, Arbeitsgas: Argon

Um den Nachteil zusätzlicher Messungen zu umgehen wurde ein Spektrometer mit einem sog. Flat-Field-Gitter konstruiert. Den mechanischen Aufbau gibt die Skizze in Abbildung 3.4 wieder. Das Spektrometer kann über einen 150 mm Standard Vakuumflansch an die Experimentierkammer angeflanscht werden. Ein von außen bedienbares

Ventil ermöglicht es das Spektrometergehäuse hermetisch abzuschließen, wodurch die Verschmutzung des Gitters durch Pumpenöl oder Staub weitgehend verhindert werden kann. Das Flat-Field-Gitter ist ein speziell für ebene zweidimensionale Detektoren, wie z.B. CCD-Kameras, korrigiertes toroidales Gitter. Das Spektrum liegt nicht auf dem Rowland-Kreis wie bei normalen Toroid-Gittern, sondern in einem Wellenlängenbereich von 10 nm bis 110 nm auf einer Geraden von 40 mm Länge. Bei einem entsprechend ausgedehnten Detektor kann ein komplettes Spektrum mit einer Einstellung aufgenommen werden. Das Gitter hat eine Strichzahl von 450 Linien/mm und eine angegebene Auflösung von 0,075 nm. Bei einem Abstand Quelle-Gitter von 292 mm, einer nutzbaren Gitterfläche von 10 mm×30 mm und einem Einfallswinkel von $70,56^\circ$ erhält man für die Dispersion den Wert von 2,5 nm/mm und ein Raumwinkelement von $1,9 \cdot 10^{-4}$ sr.

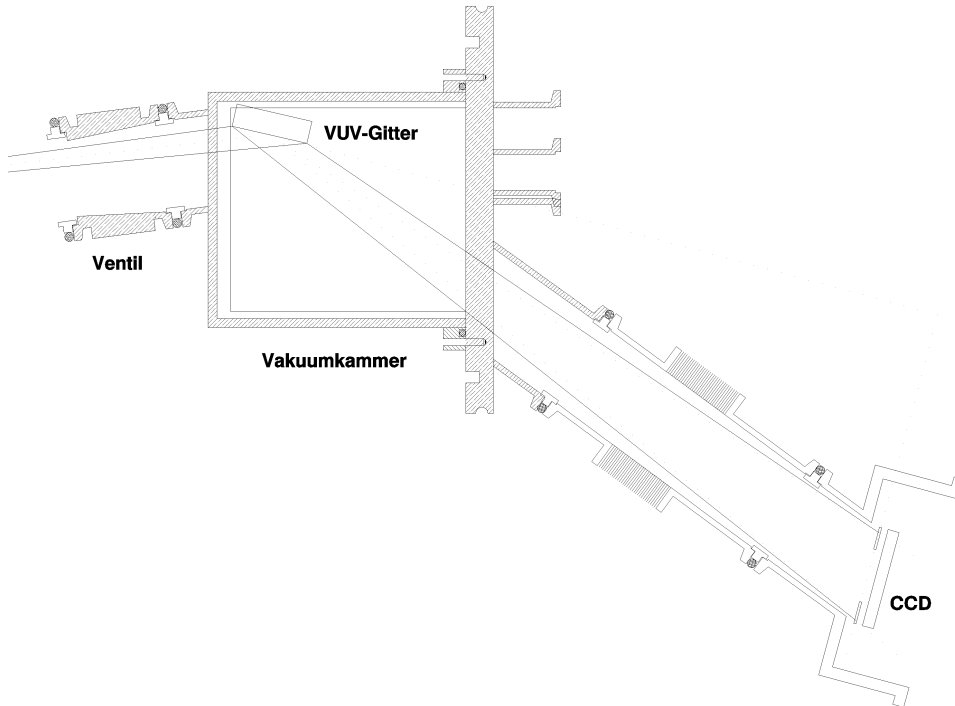


Abbildung 3.4: Skizze des VUV-Flatfield-Gitterspektrometers

Für den Einsatz des Spektrometers an dem Ultrakurzzeit-Lasersystem mußte das neu konstruierte Meßgerät justiert und kalibriert werden. Als Kalibrierquelle wurde die Hohlkathodenentladungsquelle verwendet. Ein mit dem CCD-Detektor aufgenommenes Spektrum ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Die Aufnahme zeigt über den gesamten Spektralbereich keinen meßbaren Astigmatismus. Da sich das Spektrum über eine Länge von 40 mm erstreckt, kann aufgrund der Breite des CCD-Detektors von 25 mm nur jeweils eine Hälfte des nutzbaren Spektralbereichs aufgenommen werden. Abbildung 3.6 zeigt die Abbildung eines Pinholes als Eingangsblende mit 20 μm Durchmesser. Über den gesamten nutzbaren Spektralbereich war kein Astigmatismus meßbar. Die spatiale Auflösung des Spektrometers wird durch die Pixelgröße der CCD-Kamera von $24 \times 24 \mu\text{m}$ begrenzt. Daraus errechnet sich für die spektrale Auflösung ein Wert von 0,07 nm, was in

guter Übereinstimmung mit dem vom Hersteller angegebenen Wert von 0,075 nm liegt.

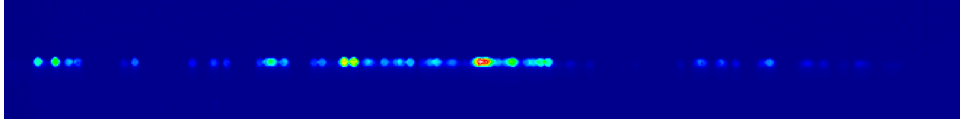


Abbildung 3.5: 2D-Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle. Aufgenommen mit dem VUV-Flatfield-Gitterspektrometer. Aperturblende: 150 μm Arbeitspunkt: 500 V, 1 A, Arbeitsgas: Argon

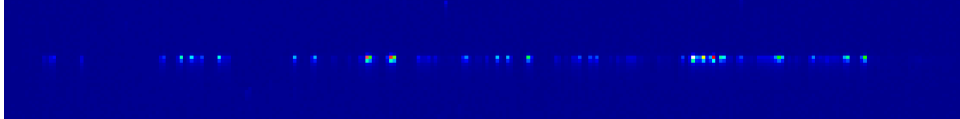


Abbildung 3.6: 2D-Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle. Aufgenommen mit dem VUV-Flatfield-Gitterspektrometer. Aperturblende: 20 μm Arbeitspunkt: 500 V, 1 A, Arbeitsgas: Argon

Bei dem Strahlungsnormal ist die Strahlstärke und mittlere Strahldichte ausgewählter Emissionslinien absolut mit einer Unsicherheit von 10% vermessen worden [45]. Mit Hilfe des VUV-Monochromators konnte die Beugungseffizienz bestimmt werden. Dazu wurden zwei Meßreihen aufgenommen. Bei der ersten Reihe wurde die integrale Strahlungsleistung mit der CCD-Kamera direkt hinter dem VUV-Monochromator bestimmt. In einer zweiten Messung wurde das Flatfield-Gitterspektrometer hinter dem Monochromator angeflanscht und wiederum mit der CCD-Kamera die Strahlungsleistung detektiert. Die in Abbildung 3.7 dargestellte Beugungseffizienz des Gitters in Abhängigkeit von der Wellenlänge liegt bei bis zu 11%. Gegenüber der VUV-Detektion mit einem torischen VUV-Gitter und einem System aus Phosphorschirm/Abbildungsoptik/Diodenzeile als Detektor besitzt das System VUV-Flatfield-Gitter in Verbindung mit einer rückseitig gedünnten CCD-Kamera eine um den Faktor 100 höhere Empfindlichkeit.

3.3 Hohlkathodenentladungsquelle als Kalibrierstandard

Um mit dem Spektrometersystem quantitative Aussagen über Wellenlänge und Photonenfluß der Strahlung machen zu können, muß das Reflexionsvermögen bzw. die Beugungseffizienz der optischen Komponenten sowie die spektrale Empfindlichkeit des Detektors bestimmt werden. Für diese Messungen benötigt man eine durchstimbare monochromatische VUV-Lichtquelle mit kalibriertem Photonenfluß. Weitere Anforderungen sind hohe Intensität und Stabilität der Strahlung, da die Reflektivität von Spiegeln und Gittern im Bereich der VUV-Strahlung nur noch im Bereich von 10-20 % liegt. Für die Wellenlängenkalibrierung des Spektrometers ist eindeutig identifizierbare Linienstrahlung sowie ein großer Wellenlängenbereich vorteilhaft. Aufgrund der hohen Absorptionskoeffizienten der VUV-Strahlung in Medien können nur fensterlose Lichtquellen zum Einsatz kommen. Neben Reflektometern an Synchrotronstrahlungsquellen bietet sich

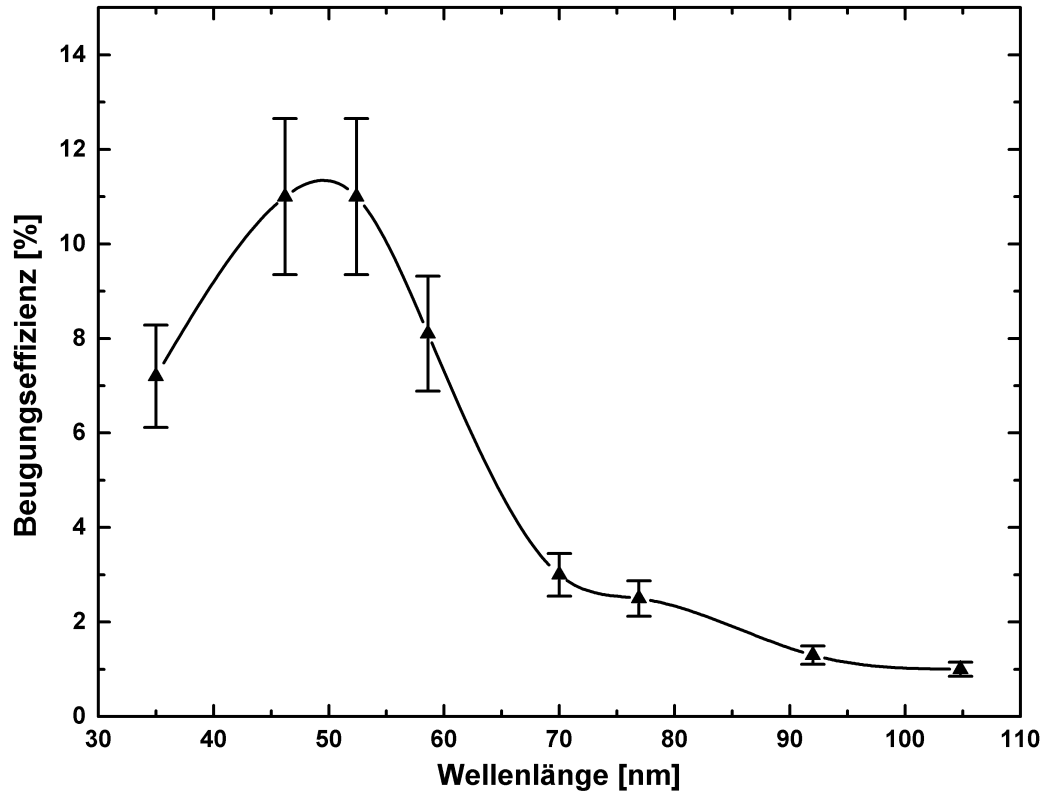


Abbildung 3.7: Beugungseffizienz des VUV-Flatfield-Gitterspektrometer

die Hohlkathodenentladungsquelle (HK-Lampe) an. Die HK-Lampe emittiert ein Linienspektrum im Wellenlängenbereich von 40 nm bis 125 nm.

Der Hohlkathodeneffekt

Die Hohlkathodenentladung ist eine spezielle Form der Glimmentladung und wurde von PASCHEN 1916 entdeckt [46]. Bei einer normalen Glimmentladung mit ebener Geometrie bilden sich vier dunkle und vier strahlende Entladungsbereiche aus. Die leuchtende positive Säule hat im allgemeinen die größte Ausdehnung. Verwendet man eine rotationssymmetrische Kathodengeometrie, so erhält man in einem bestimmten Druckbereich ein vollständig anderes Bild. Das helle negative Glimmlicht füllt den gesamten Kathodenraum aus wogegen die positive Säule und das Anodenglimmlicht nur noch schwach leuchten. Die Hohlkathodenentladung erreicht eine um etwa zwei Größenordnungen höhere Stromdichte als eine normale Glimmentladung. Die Brennspannung bei der Hohlkathodenentladung fällt fast vollständig am Kathodenfall ab. Da die Ausdehnung des Kathodenfalls klein gegenüber dem Durchmesser der Kathode ist, kann das negative Glimmlicht als nahezu feldfreies Gebiet angesehen werden. Die mittlere freie Weglänge der Elektronen ist bei typischen Teilchendichten im Betrieb der Quelle größer als der Kathodendurchmesser. Die aus der Kathode austretenden Elektronen werden im Kathodenfallraum beschleunigt, durchlaufen den fast feldfreien Raum des negativen Glimm-

lichts und werden von der gegenüberliegenden Kathodenwand reflektiert. Die Elektronen werden vom Potentialtopf des Hohlkathodenzyklinders eingefangen. Diese Pendelelektronen geben einen großen Teil ihrer Energie durch ionisierende und anregende Stöße an die Atome des Arbeitsgases ab, bevor sie den Kathodenraum verlassen. Der Hohlkathodeneffekt ist für die Erhöhung der Ionendichte an der Kathode verantwortlich. Bei der Ionisierung der Edelgasatome entstehen energieärmere Sekundärelektronen, die für Anregungen im negativen Glimmlicht verantwortlich sind. In der Hohlkathodenentladung treten somit zwei Elektronengruppen mit unterschiedlicher Energie und Dichte auf. Durch das Auftreffen von Ionen und metastabilen Atomen auf die Kathodenwand werden zusätzlich Elektronen ausgelöst. Gegenüber der normalen Glimmentladung werden bei der Hohlkathodenentladung durch die intensive VUV-Strahlung im negativen Glimmlicht deutlich mehr Elektronen durch den Photoeffekt an den Kathodenwänden generiert. Aufgrund der Wasserkühlung des Kathodenzyklinders werden keine thermischen Elektronen generiert. Die hohe Stromdichte der Hohlkathodenentladung bedingt eine hohe Volumenstrahldichte im negativen Glimmlicht. Dadurch ist die Hohlkathodenentladungsquelle ein intensiver Linienstahler im VUV-Bereich. Die niedrige Gas- und Kathodentemperatur in der Entladung bedingt eine praktisch untergrundfreie Linienemission. Durch Wahl des Arbeitsgases und des Kathodenmaterials ist eine Auswahl der Emissionslinien in einem breiten Wellenlängenbereich möglich.

Die verwendete Quelle emittiert je nach Arbeitsgas (Ar, He, Ne, Xe, Kr) ein dichtes charakteristisches Linienspektrum mit sehr geringer Untergrundstrahlung und deckt den Wellenlängenbereich von 20 nm bis 170 nm ab. Die HK-Lampe ist von der PTB als Transfer-Strahlungsnormal kalibriert worden [45]. Durch die Kathodengeometrie sowie die makroskopischen Parameter wie Brennspannung, Arbeitsgasdruck und Entladungsstrom wird die Entladung bestimmt. Die Strahlstärke der Hohlkathodenentladungsquelle wird durch die von außen vorgegebenden Parameter genau definiert. Die Entladungsquelle ist in Abbildung 3.8 gezeigt.

Die Entladungsquelle ist modular aufgebaut und kann zu Wartungszwecken leicht zerlegt werden. Die beiden Anodenblöcke rechts und links werden durch zwei geschliffene Glasblöcke vom Kathodenblock isoliert. Der Kathodenzyklinder aus Aluminium sitzt in einer Paßbohrung des Kathodenblocks. Das in den vorderen Anodenblock integrierte differentielle Pumpsystem ermöglicht eine fensterlose Beobachtung der vom negativen Glimmlicht emittierten VUV-Strahlung. Das längs der Zylinderachse im Kathodenzyklinder entstehende Entladungsplasma läßt sich durch eine Bohrung im hinteren Anodenblock beobachten. Der Gaseinlaß befindet sich zwischen der ersten und zweiten Stufe des differentiellen Pumpsystems. Bei für die Hohlkathodenentladung typischen Drücken von etwa 1 mbar beträgt die mittlere freie Weglänge der Atome ca. 100 μm und ist damit deutlich kleiner als die Ausdehnung des Gaseinlaßsystems. Die Anordnung bewirkt, daß der Fluß von im Kathodenzyklinder abgesputterten Aluminiumatomen durch die Aperturblende erheblich reduziert wird. Eine Kontamination der nachfolgenden optischen Komponenten sowie das Zuwachsen der Aperturblende mit Aluminium wird damit deutlich vermindert. Die Aperturblendendurchmesser beträgt 1,2 mm, was den nutzbaren Raumwinkel der Quelle auf 3×10^{-4} sr begrenzt. Die Anodenblöcke und der Kathodenblock sind wassergekühlt um die Quelle im Betrieb thermisch konstant zu halten. Die Kalibrie-

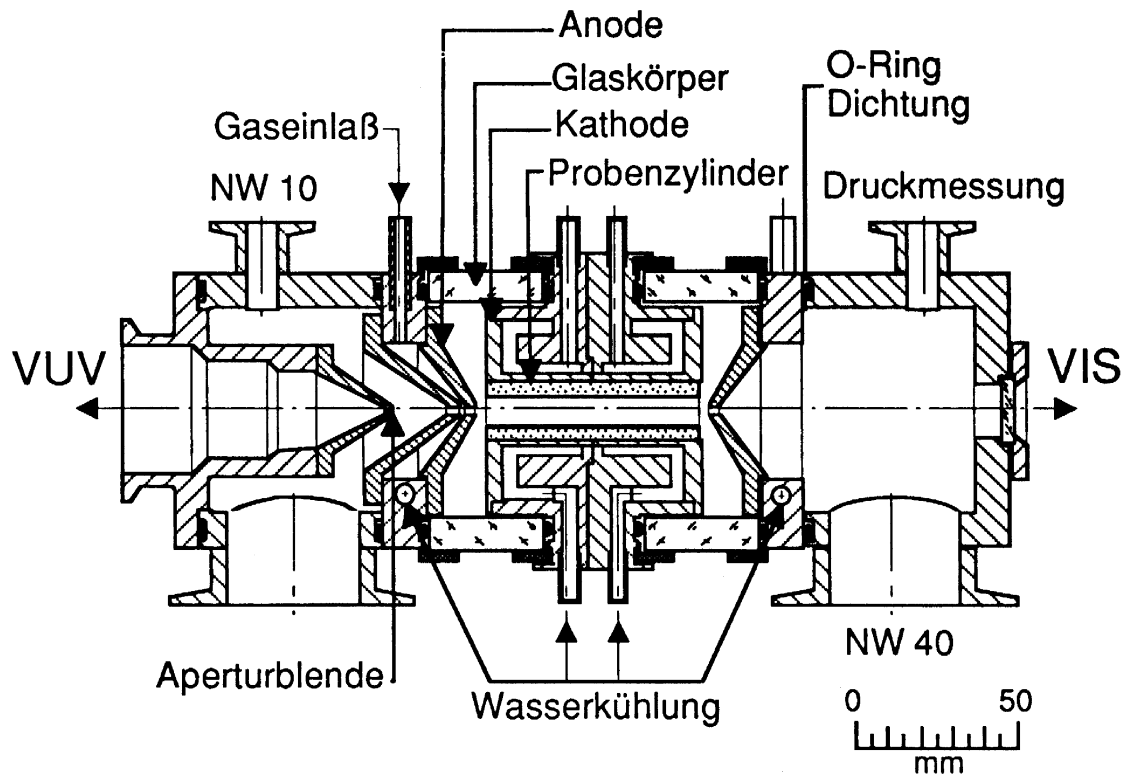


Abbildung 3.8: Schnittzeichnung durch die Hohlkathodenentladungsquelle (aus [47])

rung der Entladungsquelle für einen bestimmten Arbeitspunkt wird über feste Strom- und Spannungswerte vorgenommen. Die HK-Lampe wird als Strahlungsnormal mit einer Spannung von 500 V und einem Strom von 1 A betrieben. Der Arbeitsgasdruck in der Hohlkathode ist empfindlich vom vorgegebenen Arbeitspunkt abhängig [47]. Die Regelung des Gasdrucks erfolgt über ein Feinregulierventil. Je nach verwendetem Arbeitsgas und damit unterschiedlichen Sputterraten für den Kathodeneinsatz, beträgt die Brenndauer der HK-Quelle 30-40 Stunden. Danach muß der Kathodeneinsatz erneuert werden und die HK-Quelle zerlegt und gereinigt werden. Nach einer Überholung ist eine Einbrennphase von ca. 2 Stunden bei reduzierter Spannung und reduziertem Strom nötig um die kalibrierten Arbeitspunkte wieder zu erreichen. Als Arbeitsgas zum Einbrennen ist Argon besonders geeignet, da es sich zum einen durch seine niedrige Ionisierungsenergie leicht zünden läßt und zum anderen von allen Edelgasen den höchsten Auslösekoefizienten besitzt. Die Aluminiumoxidschicht einer neuen Aluminiumkathode wird durch den Ar-Ionenbeschuß am wirkungsvollsten entfernt.

In Abbildung 3.9 ist das Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle für das Edelgas Argon dargestellt. Argon besitzt ein breites Linienspektrum der jeweiligen Ionisationsstufen und eignet sich damit gut für die Kalibrierung von Spektrometern und Detektoren. Das Spektrum wurde mit dem VUV-Flatfield-Gitter Spektrographen aufgenommen.

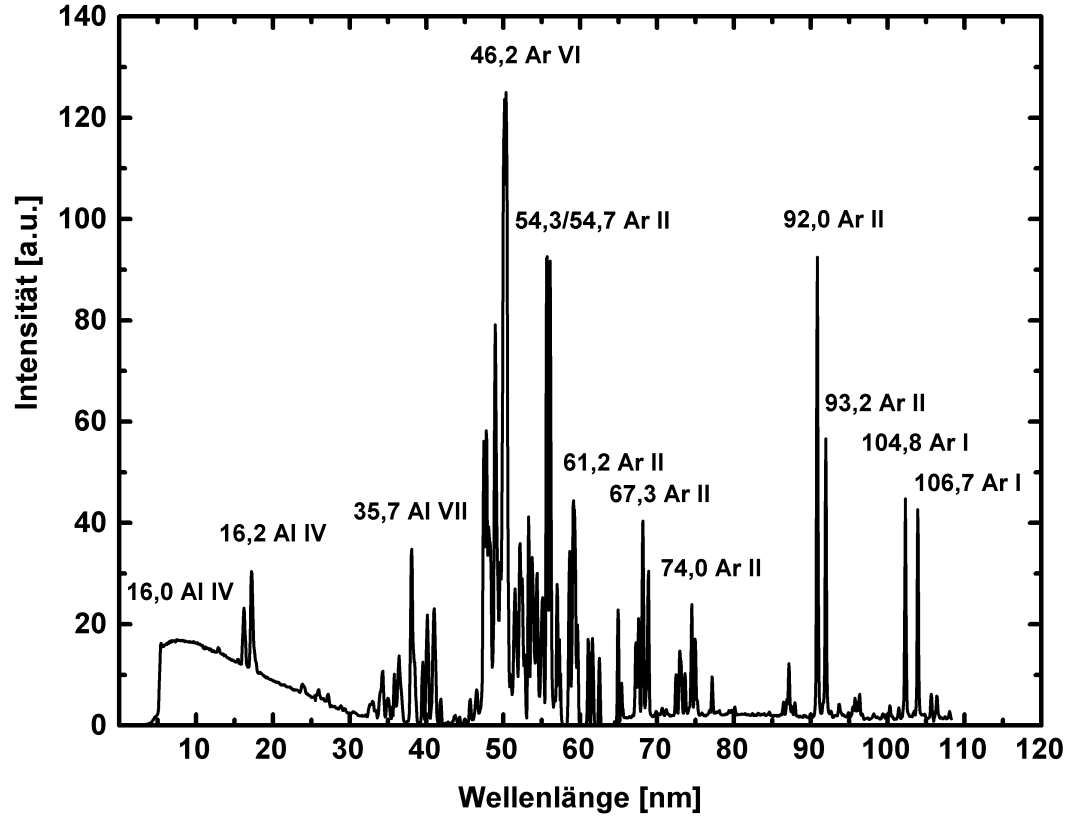


Abbildung 3.9: Spektrum der Hohlkathodenentladungsquelle. Aufgenommen mit dem VUV-Flatfield-Gitter Spektrographen. Arbeitspunkt: 500 V, 1 A, Arbeitsgas: Argon

3.4 Detektoren für den XUV- und Röntgenbereich

3.4.1 CCD-Detektoren

Für die zweidimensionale Detektion von Strahlung im VUV- und XUV-Bereich, d. h. für den Wellenlängenbereich von 200 nm bis hinunter zu 10 nm, existieren nur einige wenige Detektoren. Aufgrund der geringen Eindringtiefe der Strahlung (10 nm bei einer Wellenlänge von 100 nm) kommen nur oberflächensensitive Verfahren in Betracht. Neben dem Röntgenfilm ist in den letzten Jahren der CCD-Detektor (Charged Coupled Device) entscheidend weiterentwickelt worden, sodaß die spektrale Empfindlichkeit des Detektors bis in den VUV-Wellenlängenbereich ausgedehnt werden konnte [48]. Die CCD-Kamera vereint die Vorteile der Photodiode mit denen des Films: Zweidimensionale Information und einfaches Auslesen und Weiterverarbeiten der Daten. Im folgenden Kapitel wird ein VUV-Meßplatz für die spektrale Untersuchung von höheren Harmonischen von Femtosekunden-Laserpulsen speziell für den Wellenlängenbereich 10 nm bis 100 nm vorgestellt.

Aufbau und Wirkungsweise

Der CCD-Detektor besteht standardmäßig aus einer Matrix von Metall-Isolator-Halbleiter Kondensatoren als lichtempfindliche Elemente (Pixel). Die Funktionsweise beruht darauf, daß die durch die Photoabsorption erzeugten Photoelektronen in Potentialtöpfen der Kondensatoren gespeichert werden. Die Ladungspakete werden durch lokale Veränderung der Potentiale in benachbarte Kondensatoren weitergeschoben und einem Ausgangsverstärker zugeführt (Charged Coupled Device).

Im Herstellungsverfahren wird Siliziumdioxid durch Oxydation auf p-dotiertem Silizium erzeugt. Durch Aufbringen von metallenen Kontakten auf das nichtstrukturierte Halbleitermaterial wird eine Matrix von Metall-Oxid-Halbleiter-Kondensatoren (Metal-Oxide-Semiconductor) erzeugt. Der Aufbau des Detektors ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Bei frontseitig belichteten CCDs erfolgt die Belichtung durch die Gatestruktur und die Siliziumoxidschicht hindurch. Aufgrund der Absorption der einfallenden Strahlung in die je ca. 100 nm dicken Schichten ist das CCD im ultravioletten Spektralbereich nicht mehr empfindlich.

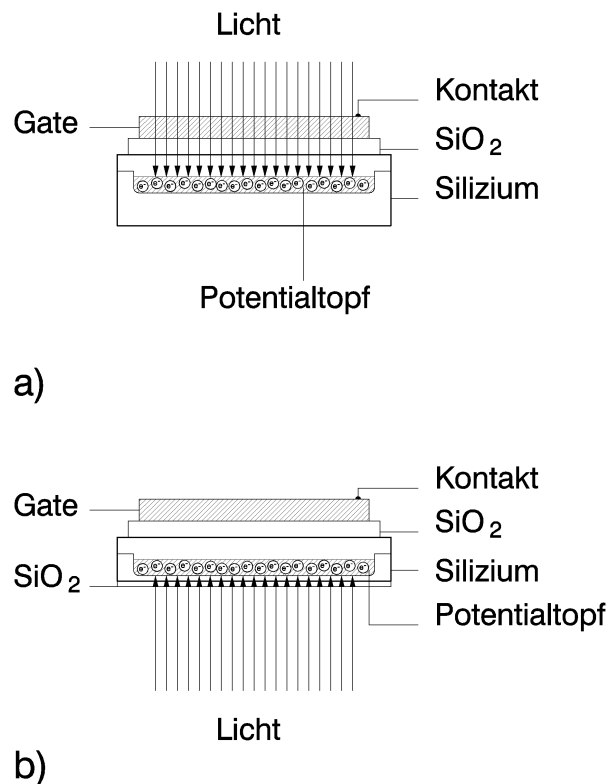


Abbildung 3.10: a) Aufbau frontseitig belichtbare CCD, b) rückseitig belichtbare CCD [49]

Aus diesem Grunde wurden rückseitig gedünnte CCDs entwickelt. Die Belichtung erfolgt hier von der Rückseite. Das Halbleitermaterial wird durch Ätzprozesse auf Dicken von ca. 20 μm bis 10 μm heruntergedünnt. Die Photonen müssen nur noch das ca. 10 nm dicke natürliche Siliziumdioxid durchdringen um in das depletierbare Halbleitersubstrat

zu gelangen. Die Empfindlichkeit ist durch folgende Effekte limitiert:

1. Reflexionen an der Rückseite
2. Absorption in der Siliziumdioxid Schicht
3. Verluste beim Ladungstransfer im Detektor

Die Reflexionsverluste sind unabdingbar, da für den ultravioletten Strahlungsbereich aufgrund der geringen Eindringtiefe der Strahlung keine Antireflexbeschichtungen mehr aufgebracht werden können. Aus dem gleichen Grund ergibt sich der Hauptverlustmechanismus durch die Absorption des einfallenden VUV-Lichts in der Siliziumdioxid Schicht. Die bis in den Wellenlängenbereich von 150 nm hinunter transparente Quarzschicht weist für die Wellenlänge von 100 nm nur noch eine Absorptionslänge von ca. 10 nm auf. Die Quanteneffizienz wird allein dadurch um ca. 60 % verringert. CCD-Detektoren neuer Bauart weisen nur noch sehr geringe Ladungstransferverluste ($\leq 10^{-5}$) auf. In guter Näherung kann davon ausgegangen werden, daß dieser Effekt keinen nennenswerten Einfluß auf die Empfindlichkeit hat. In Abbildung 3.11 ist die gemessene Quanteneffizienz für den im Meßaufbau verwendeten CCD-Chip TK1024T der Firma SiTe dargestellt.

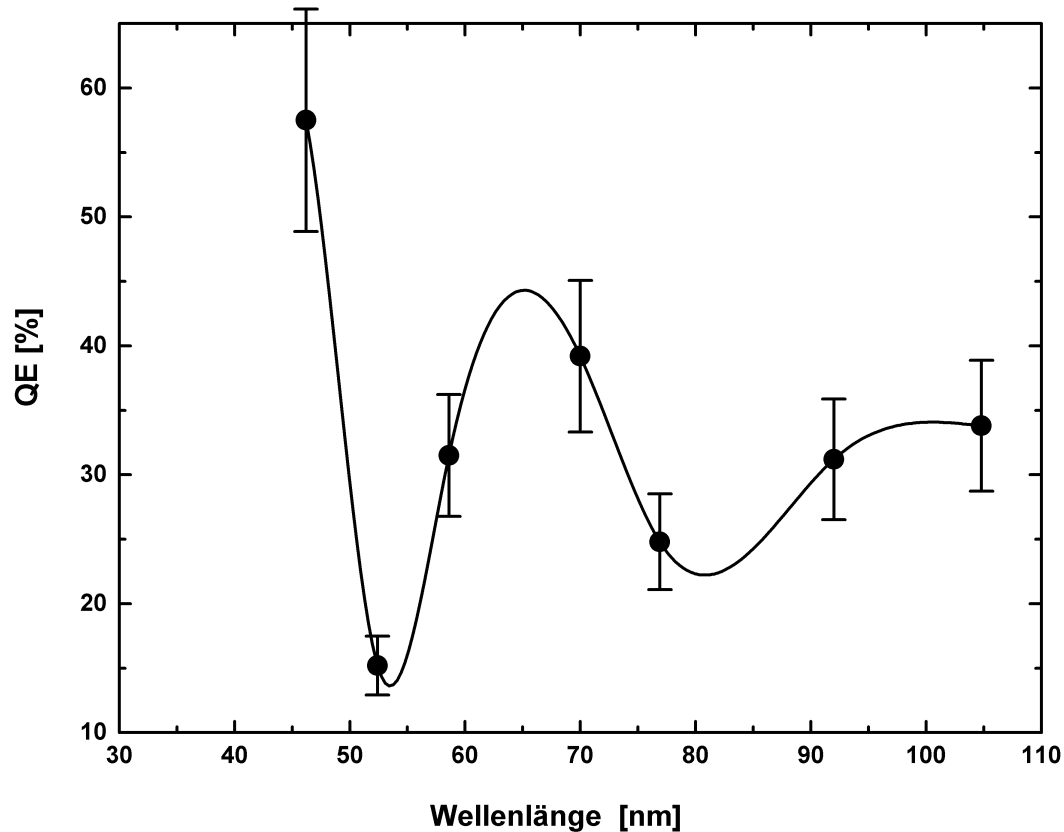


Abbildung 3.11: Quanteneffizienz der rückseitig gedünnten CCD (SiTe TK1024T)

Die Werte für die Quanteneffizienz bei einer Wellenlänge des einfallenden Lichts von 60 nm bis 55 nm liegen im Bereich von 15 % bis zu 57 %. Die mittlere Eindringtiefe der

Strahlung beträgt in diesem Wellenlängenbereich etwa 10 nm (siehe Abbildung 3.12). Typischer Weise liegt die Dicke der Siliziumdioxidschicht ebenfalls in dieser Größenordnung. Ein Großteil der in der Siliziumdioxidschicht erzeugten Photoelektronen geht deshalb für die Detektion verloren, sodaß etwa 30 % der Photonen im Siliziumkristall Elektronen generieren können. Aufgrund von Oberflächendefekten an der Grenzschicht zwischen Silizium und Siliziumdioxid gelangt wiederum ein Teil der Elektronen nicht in die Nachweiszonen.

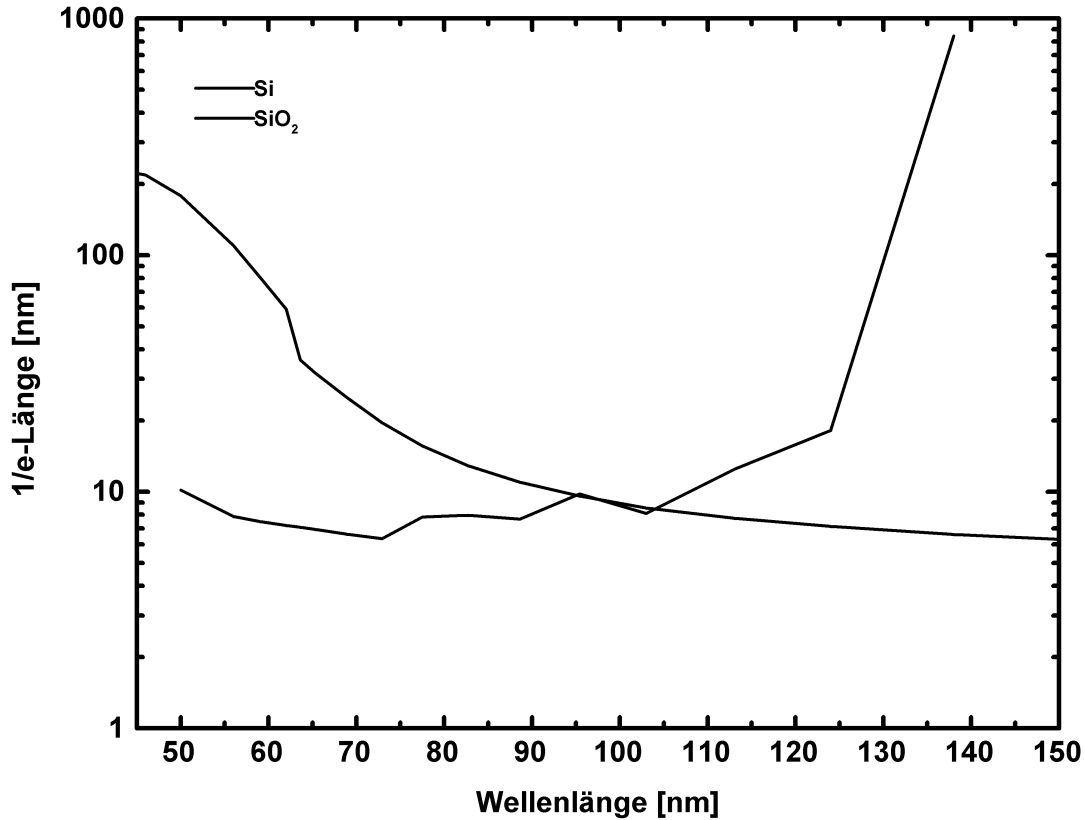


Abbildung 3.12: Mittlere Eindringtiefe (1/e-Länge) für Ultraviolette Strahlung im Wellenlängenbereich 10–100 nm für Silizium und Siliziumdioxid [50]

3.4.2 Strahlenschäden in CCD-Detektoren

Bei der Durchführung der Kalibriermessungen an dem VUV-Spektrographen trat ein Strahlenschaden an der CCD-Kamera auf. Bei Messungen im VUV-Strahlungsbereich um 80 nm Wellenlänge wurde die Empfindlichkeit des CCD-Chips deutlich reduziert. Bei hohen Strahlungsdosen war die Kamera an der geschädigten Stelle völlig blind für VUV-Strahlung. Sichtbares Licht konnte aber weiterhin detektiert werden. Der Dunkelstrom war lokal deutlich erhöht. In Abbildung 3.13 ist der Strahlenschaden auf dem CCD-Detektor dargestellt.

Die Strahlenschäden an CCD-Detektoren werden auch von anderen Autoren beschrieben

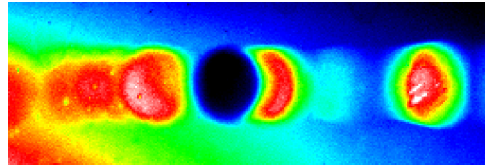


Abbildung 3.13: Abnahme der lokalen Empfindlichkeit des CCD-Chips durch VUV-Strahlung.

[51][49]. Eine Erhöhung des Dunkelstroms um den Faktor 10 bei der Bestrahlung von Fotodioden mit weicher Röntgenstrahlung und einer Dosisleistung von 10^7 rad wurde von [52] beobachtet. Eine detaillierte Beschreibung der elementaren Prozesse, die bei der Bestrahlung von SiO_2/Si Grenzflächen auftreten, findet man in GRUNTHANER ET AL- [53]. Die Strahlenschäden in Silizium und Siliziumdioxid lassen sich in zwei Gruppen aufteilen:

1. Gitterfehler, die durch hochenergetische Partikel hervorgerufen werden.
2. Elektronen-Loch Paare, die durch die ionisierende Strahlung erzeugt werden.

Bei Anwendungen im VUV-Bereich und im Bereich der weichen Röntgenstrahlung kann Punkt 1.) ausgeschlossen werden. Die von den in der SiO_2 -Schicht absorbierten Photonen erzeugten Elektronen-Loch Paare werden durch den Potentialverlauf im CCD-Detektor separiert. Die Elektronen bewegen sich durch Diffusion und Drift durch die SiO_2/Si -Grenzfläche und ein Teil gelangt in die Nachweiszonen. Die Löcher bewegen sich in Bezug auf die Elektronen relativ langsam und 1-30% der Löcher bilden Störstellen an der Grenzfläche. Der Prozentsatz ist stark abhängig vom Herstellungsprozeß des Siliziumoxids [51]. Die Bildung der Störstellen in einem MOS-Bauelement, wie es ein CCD-Detektor darstellt, kann durch ein 4-stufiges Modell beschrieben werden.

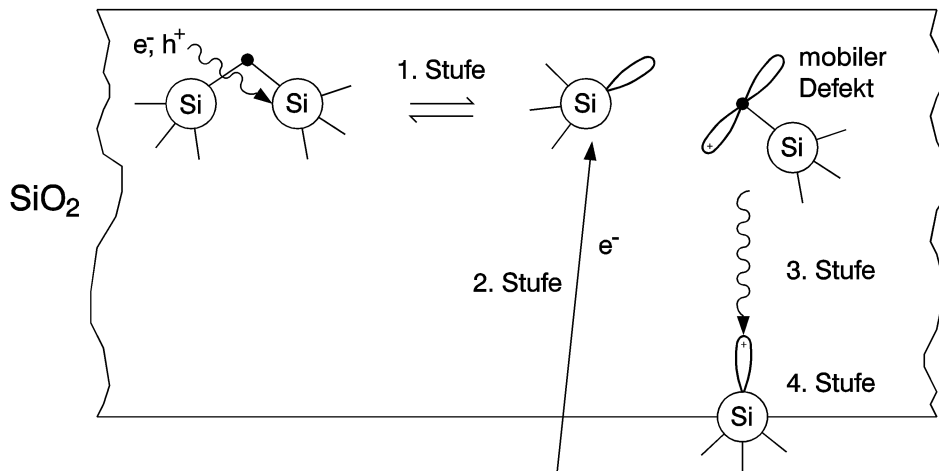


Abbildung 3.14: Modell nach Grundthaner et al. [53]. Bildungsmechanismus von Grenzflächenstörstellen in einem Oxid, hervorgerufen durch ionisierende Strahlung.

1. Stufe: Strahlungsinduzierte Erzeugung einer Si-O Bindung

Bei der Absorption eines Photons wird eine Si-O Bindung in einen ungebundenen Sauer-

stoffdefekt und eine trivalente Silizium Bindung mit drei Sauerstoff Gitteratomen (O_3-Si) aufgebrochen. Der trivalente Silizium Zustand erzeugt feste positive Ladungen, da seine nicht aufgefüllten Valenzorbitale Störstellen für Löcher darstellen. Der ungebundene Sauerstoffdefekt ist mobil und ist für das anschließende Umordnen des Gitters verantwortlich.

2. Stufe: Tunnel Rekombination

Die Neutralisierung der positiven Ladungen erfolgt über Tunnelelektronen vom Substratmaterial her. Die Tunnelwahrscheinlichkeit nimmt exponentiell mit der Entfernung der Störstelle von der Grenzfläche ab. Die Reduzierung der Tunnelwahrscheinlichkeit ist gleichbedeutend mit dem Anwachsen der effektiven Lebensdauer der Störstellen.

3. Stufe: Wasserstoff unterstütztes Abwandern des ungebundenen Sauerstoffdefekts

Die schnelle Bewegung des ungebundenen Sauerstoffdefekts beruht auf einen niederenergetischen Wanderungsprozeß. Der ungebundene Defekt mit seinem einfach besetzten Zustand wird von einem nahen Silizium Atom eingefangen und bildet einen fünfwertigen Übergangszustand. Gleichzeitig mit der Bildung der fünfwertigen Si-O Bindung, bricht die schwächste Si-O Bindung im Komplex auf. Ohne einzelne beweglicher Sauerstoffatome wandert die ungebundene Störstelle. Begleitend zu diesem Effekt wandert die OH-Gruppe durch das Erzeugen und Aufbrechen der Bindungen. Zur SiO_2 -Grenzschicht hin werden die Si-O Bindungen zunehmend gestreckt und der Wanderungsprozeß bewegt sich zur Grenzschicht hin.

4. Stufe: Bildung der Störstelle bei Erreichen der Grenzfläche

An der SiO_2/Si -Grenzschicht wird ein an den Silizium Kristall gebundenes Siliziumatom durch ein ungebundenes Sauerstoffatom aufgebrochen, da die Si-Si Bindung schwächer ist als die Si-O Bindung. Der Defekt ist nun nicht mehr länger mobil, da nun eine starke Bindung zum Kristall besteht. Dabei können verschiedene Grenzschichttypen entstehen. Durch parametrische Elektronen Resonanz Messungen (EPR) [54] wurden Si_3-Si und $SiO_2/Si(111)$ Grenzflächen nachgewiesen.

In der Literatur finden sich nur Beschreibungen von Strahlenschäden, die durch Röntgenstrahlung im Energiebereich von 1-15 keV erzeugt wurden. Die Schäden ließen sich nur mit thermischen Ausheilprozessen des Detektors beseitigen [51]. Die bei unseren Messungen auftretenden Photonenenergien sind über eine Größenordnung niedriger.

An der Grenzfläche vom kristallinen Silizium zum Siliziumdioxid treten Störstellen in der Bandstruktur des Siliziums auf. Sie liegen energetisch im verbotenen Band und sind in der Lage Ladungsträger, abhängig von ihrer energetischen Lage zum Fermi-niveau, einzufangen oder zu emittieren. Die Störstellen können in vier Gruppen unterteilt werden ([55]):

1. Grenzflächenladungen
2. Gebundene Sauerstoffladungen
3. Sauerstoff gebundene Ladungen
4. Mobile ionische Ladungen

In Abbildung 3.15 ist die Verteilung der Störstellen in einem MOS-Kondensator darge-

stellt.

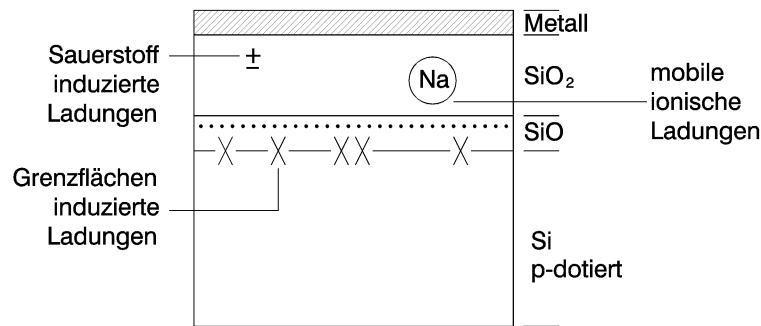


Abbildung 3.15: Störstellen in einem MOS-Kondensator mit thermisch oxydierten Silizium [55].

Die positiven Ladungen, die an der SiO_2/Si -Grenzschicht haften, erzeugen ein elektrisches Feld, daß anziehend auf die Photoelektronen wirkt. Der Potentialverlauf in einem gedünnten, rückseitig belichtbaren CCD ist in Abbildung 3.17 skizziert. Aufgrund der geringen Eindringtiefe der VUV-Strahlung im Wellenlängenbereich um 100 nm driften die im Silizium erzeugten Elektronen durch diesen Potentialverlauf zur Silizium-Siliziumdioxid Grenzschicht und sind nicht mehr nachweisbar. Mit zunehmender Strahlungsdosis bildet sich ein den Potentialtöpfen des CCD-Chips ähnliches Potential aus. Die eingefangenen Elektronen werden aber nicht ausgelesen und können über Zeiträume von Tagen im Potentialtopf verbleiben. Bei Raumtemperatur gelangen jedoch durch Diffusion Elektronen in die Nachweiszone des Detektors. Dieser Effekt läßt sich experimentell durch einen lokal erhöhten Dunkelstrom nachweisen. Auch konnte über einen Zeitraum von Tagen eine stetige Abnahme des Dunkelstroms gemessen werden. Wird die Ladung in der parasitären Potentialmulde so groß, daß die daraus resultierende Raumladungszone größer wird als die Eindringtiefe der VUV-Strahlung, findet kein Elektronentransport zu den Potentialtöpfen des Detektors mehr statt. Der Chip ist im VUV-Strahlungsbereich blind geworden. Licht längerer oder deutlich kürzerer Wellenlänge besitzt größere Eindringtiefen und kann die Potentialbarriere überwinden und die photoelektrische Absorption findet in dem depletierbaren Gebiet des CCD statt. Der Chip ist für sichtbares Licht weiterhin empfindlich.

Durch ein in der Arbeitsgruppe entwickeltes neues Verfahren [56] kann der Detektor wieder regeneriert werden. Der strahlengeschädigte Chip wird dabei mit UV-Licht im Wellenlängenbereich von 250 nm (Quecksilber-Linie) bestrahlt. In Abbildung 3.16 ist der Verlauf des Dunkelstroms des CCD-Detektors in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer mit UV-Licht dargestellt. Als Strahlquelle wurde eine handelsübliche Quecksilberdampfampe für die Spektroskopie eingesetzt, die im Abstand von ca. 10 cm vor dem Detektor platziert wurde. Der physikalische Hintergrund für den Regenerationsprozeß ist noch nicht eindeutig geklärt. Der genaue Aufbau und die Herstellungsverfahren zur Behandlung der rückseitigen Oberflächen sind von den Herstellern nicht zu erfahren, da sie Gegenstand der Industrieforschung sind [57]. Aufgrund der eingeschränkten Kenntnisse lassen sich zwei Hypothesen für den Ausheilprozeß favorisieren:

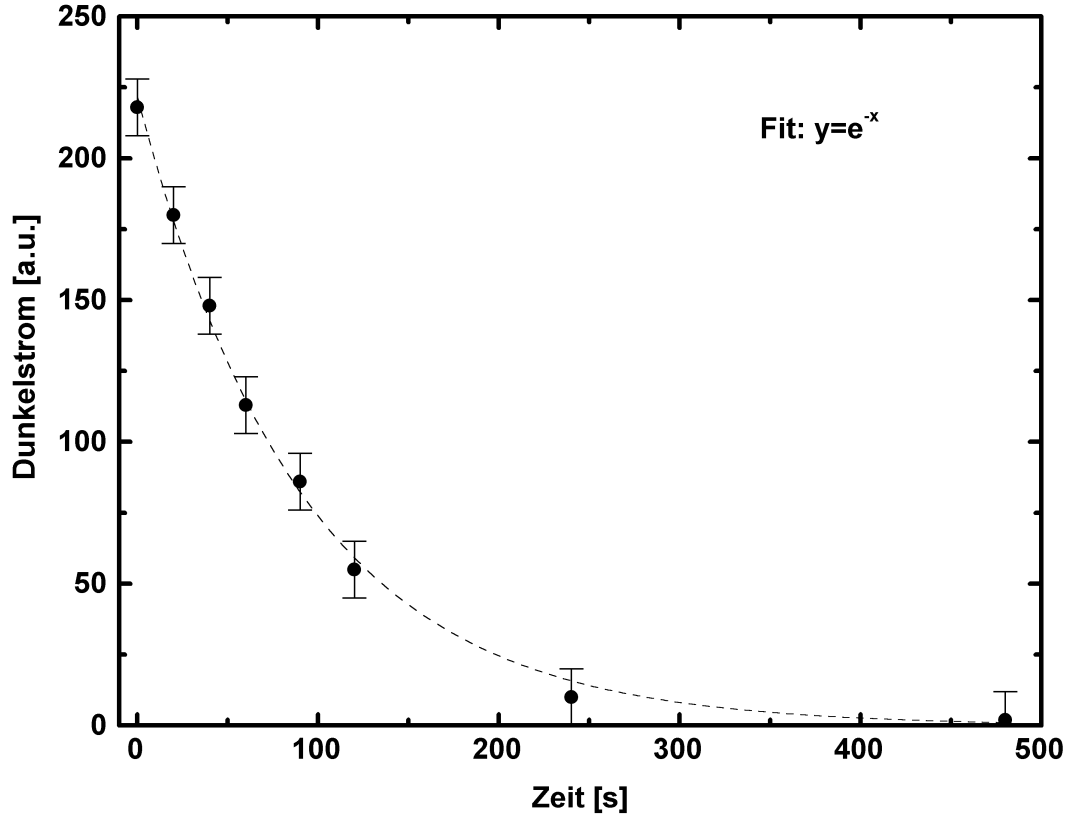


Abbildung 3.16: Abnahme des der Dunkelstroms des CCD-Chips in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit mit UV-Licht.

1. Das Modell setzt voraus, daß sich aufgrund der akkumulierten Photoelektronen eine Potentialmulde an der Grenzfläche zum Siliziumdioxid bildet. Gleichzeitig wird in der Siliziumdioxidschicht ein hoher Anteil des einfallenden VUV-Lichts absorbiert. Die mobilen Elektronen driften zur rückseitigen Elektrode und rekombinieren. Die Isolatorschicht lädt sich positiv auf. Die Potentialmulde wird dadurch noch vergrößert. UV-Licht mit der Wellenlänge von 250 nm dringt etwa 100 nm tief in den CCD-Detektor ein. Der Großteil der Strahlung wird im Bereich des parasitären Potentialtopfes absorbiert. Durch die hohe Generationsrate von Photoelektronen herrscht ein starker Überschuß an negativen Ladungen. Dadurch kann ein Teil der Elektronen die Tunnelbarriere überwinden und die positiv geladene Siliziumdioxidschicht wird neutralisiert.

2. Es existiert eine Wechselwirkung zwischen den einfallenden UV-Photonen und den Elektronen im rückseitigen Potentialtopf. Durch den Impulsübertrag Photon-Elektron werden die Elektronen aus dem Potentialtopf gestoßen und können im Siliziummaterial rekombinieren.

Der gedünnte rückseitig belichtete CCD-Detektor ist aufgrund der Beeinflussung durch die VUV-Strahlung nur bedingt einsetzbar für quantitative Messungen.

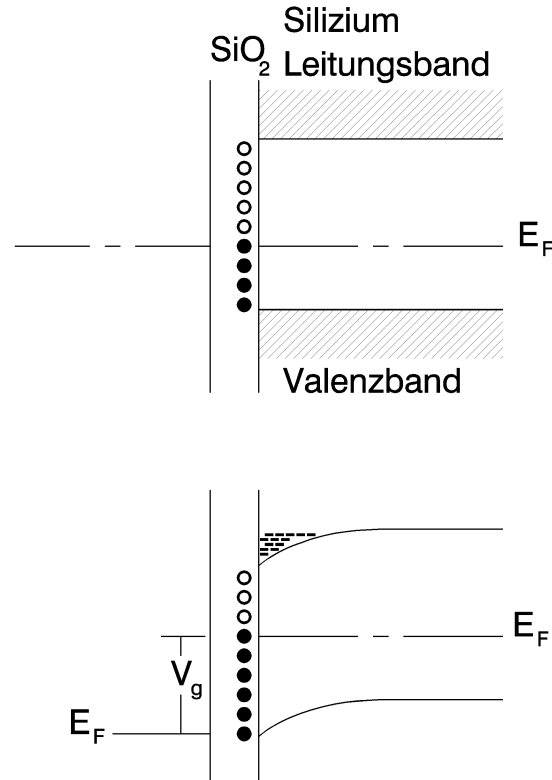


Abbildung 3.17: Potentialverlauf in gedünnten, rückseitig belichtbaren CCDs [58]

3.4.3 Phosphor-Detektoren

Die Detektion der VUV-Strahlung mit dem CCD-Detektor weist einige Nachteile auf. Im vorhergehenden Absatz wurde auf die durch die VUV-Strahlung hervorgerufenen Schäden an dem CCD-Chip eingegangen. Als weiterer Nachteil der CCD-Kamera sind die sehr hohen Anschaffungskosten des Systems zu nennen. Aufgrund des experimentellen Aufbaus ist eine Schädigung der Detektoroberfläche durch Streustrahlung des Femtosekunden-Laserimpulses nicht sicher auszuschließen. Als Alternative bietet sich der Einsatz von Phosphorschirmen an. Die Technik hat sich bewährt und es sind für viele Einsatzzwecke optimierte Phosphore kommerziell erhältlich [59].

Als Detektor für den UV- und XUV-Bereich wurde eine Glasplatte, die mit dem Phosphor ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$) beschichtet war, eingesetzt. Der Phosphor ist auch unter dem Handelsnamen P43 und GTE 2611 bekannt und hat seine Lichtemission im Bereich von 370 nm bis 680 nm, wobei das Maximum bei 545 nm liegt. Die Nachleuchtdauer liegt bei einem Abfall der Leuchtdichte von 90 % auf 10 % bei 4 ms und bei einem Abfall von 10 % auf 1 % bei 55 ms [61]. Der Phosphor eignet sich aufgrund der langen Nachleuchtdauer nur für integrative Messungen. Die Abbildung 3.18 zeigt die Quantenffizienz des Phosphors im weichen Röntgenbereich [60].

Der Einsatz des Phosphorschirms in der Bildebene des Spektrometers hat zwei entscheidene Vorteile:

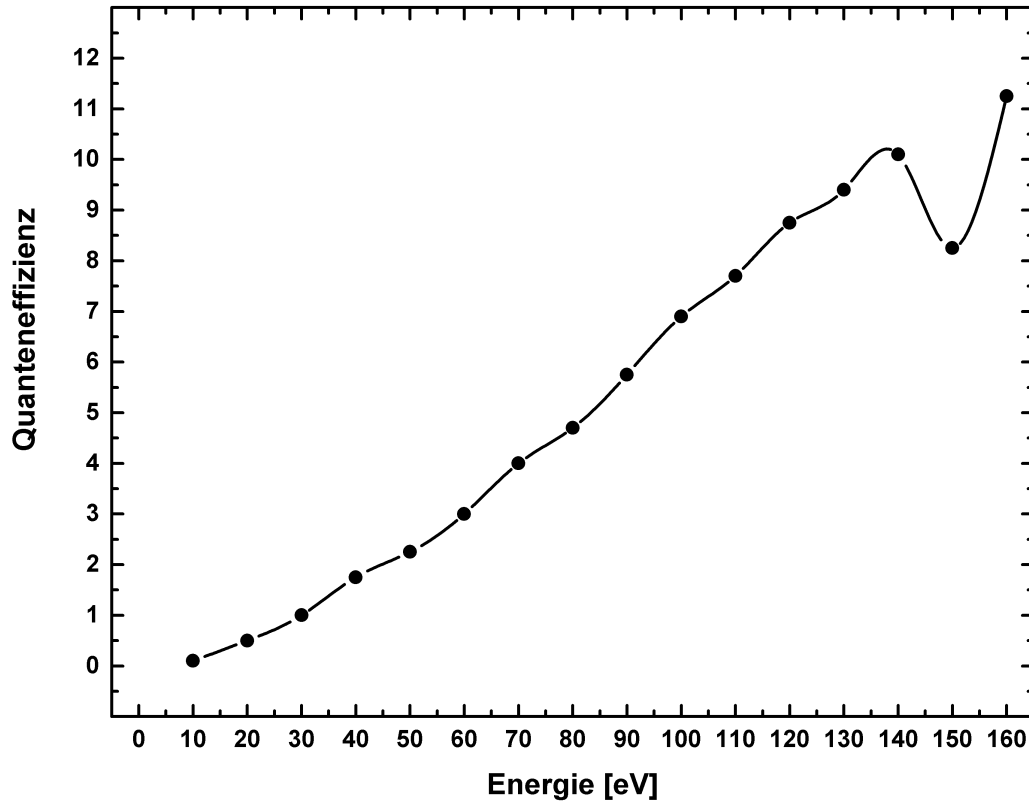


Abbildung 3.18: Quanteneffizienz des Phosphors ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$) in Abhängigkeit von der Energie [60]

1. Die Lichtemission liegt im gelb-grünen Bereich des Spektrums. Durch die nachgeschalteten Farbfilter konnte nur Licht im Wellenlängenbereich der maximalen Lichtemission des Phosphors in den Detektor gelangen und das unerwünschte Streulicht der Lasergrundwelle und der zweiten Harmonischen sehr wirkungsvoll unterdrückt werden. In Abbildung 3.19 sind Transmissionskurven der Farbfilter BG39 und GG475 dargestellt. Die Filterkombination ist optimal auf die Hauptemissionslinie des Phosphors abgestimmt.

2. Der Detektor ist leicht austauschbar und preiswert. Durch Laserstreulicht kann es aufgrund der fokussierenden Eigenschaft des torischen Gitters zu einer Zertörung des Detektors kommen. Das Phosphorpulver wird über ein Sedimentationsverfahren auf einen Glasträger aufgebracht. Die Schichtdicke, die entscheidend die Konversionseffizienz beeinflusst, ist durch dieses Verfahren jedoch nicht exakt kontrollierbar. Weiterhin ist der Phosphor stark hygroskopisch, wodurch sich seine Eigenschaften durch die Aufnahme von Wasser aus der Luft ändern können.

Durch intensive Laserstrahlung, wie z.B. Streulicht der fundamentalen Welle und der zweiten Harmonischen, wurden bei den Experimenten lokale Veränderungen in der Konversionseffizienz des Detektors beobachtet. In Abbildung 3.20 ist die relative spektrale Empfindlichkeit des Systems Phosphorschirm/Abbildungsoptik/Diodenzeile gegenüber dem rückseitig belichteten CCD-Detektor dargestellt. Die Empfindlichkeit des Phos-

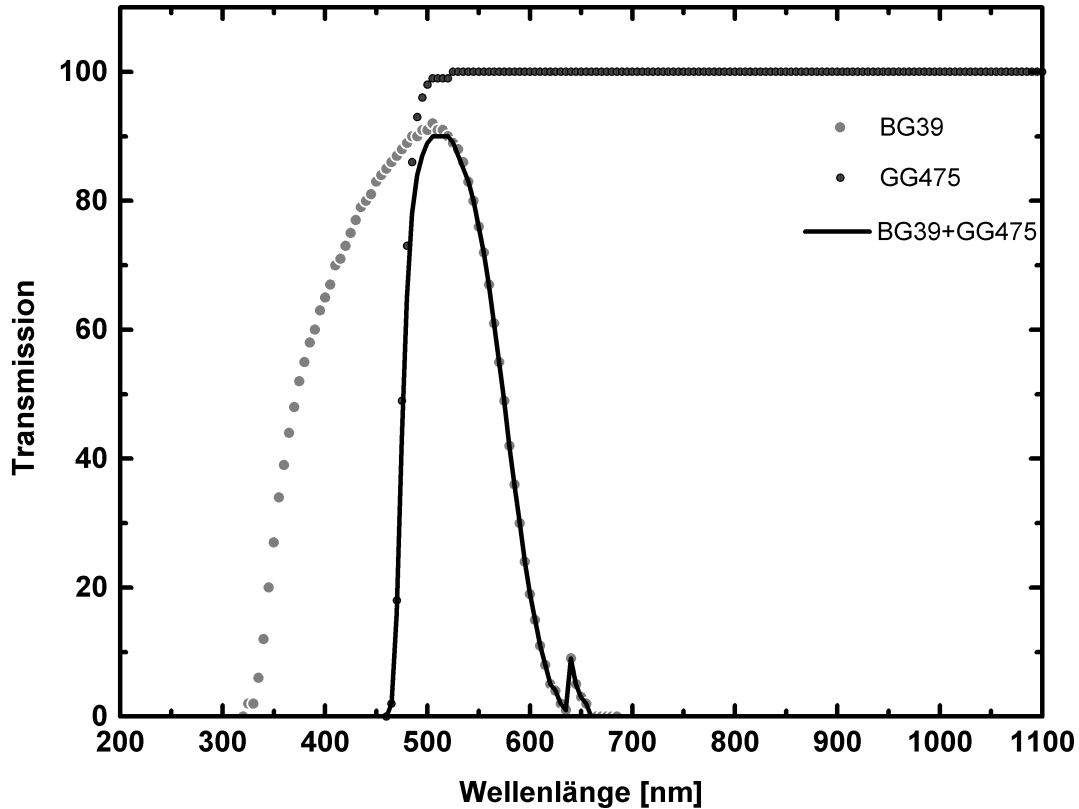


Abbildung 3.19: Transmisson der Farbfilter der Fa. Schott BG39 und GG475 (3 mm Dicke) [62]

phordetektors liegt etwa eine Größenordnung unter der des CCD-Detektors.

3.5 Röntgenkristalle und Spiegel

Die Röntgenemission aus Femtosekunden-Laserplasmen erfolgt, anders als die Emission der höheren Harmonischen, nicht in ein enges Raumwinkелеlement gerichtet, sondern in den vollen Halbraum vor dem Target. Um einen möglichst großen Teil der Strahlung detektieren zu können und somit die Meßzeiten kurz zu halten, ist eine kollimierende Röntgenoptik notwendig. Im Röntgenbereich kommt aufgrund der kurzen Wellenlänge des Lichts von einigen Angström nur Kristalloptik in Betracht. Für die Charakterisierung der Röntgenstrahlung aus fs-Laserplasmen wurden ein- und zwei-dimensional gebogene Kristalle verwendet.

3.5.1 Braggreflexion an ebenen Kristallen

Die Kristalloptik beruht auf der symmetrischen Braggreflexion. Der reflektierte Strahl setzt sich aus den von den Netzebenen des Kristalls reflektierten Teilstrahlen zusammen. Die Braggsche Reflexionsbedingung lautet:

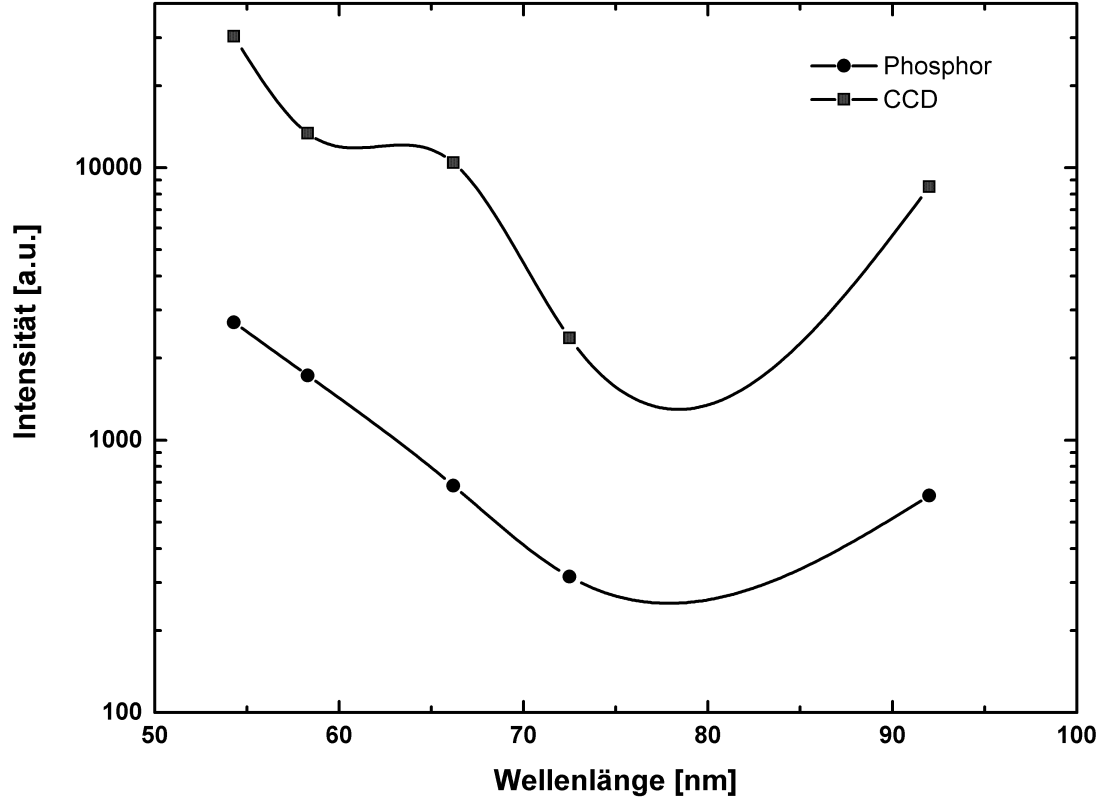


Abbildung 3.20: Relative spektrale Empfindlichkeit des Systems Phosphor ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$)/Abbildungsoptik/Diodenzeile(OMAI) im Vergleich zum gedünnten rückseitig belichteten CCD-Detektor (TK1024T SiTe)

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin\Theta \quad (3.1)$$

Hierbei ist λ die reflektierte Röntgenwellenlänge, n die Beugungsordnung, d_{hkl} der effektive Gitterebenenabstand und Θ der Bragg- oder Glanzwinkel. Abbildung 3.21 zeigt den schematischen Aufbau der Kristalloptik. Es ist eine 1:1 Abbildung dargestellt, was gleichbedeutend ist mit Quelle und Bild liegen auf dem Rowlandkreis. Bei dieser Abbildung wird die höchste Brillanz im Fokuspunkt erreicht.

Die Reflexionseigenschaften des Kristalls, d. h. das Verhältnis von reflektierter zu einfallender spektraler Energiedichte, werden durch die Reflexionskurve dargestellt.

Die Änderung des Braggwinkels $\Delta\Theta$ ist eine Funktion der Divergenzwinkel α in der Dispersionsebene und Φ senkrecht zur Dispersionsebene. Die integrale reflektierte Energie kann nach COMPTON & ALLISON durch die Gleichung 3.2 beschrieben werden, wobei α und Θ die Divergenzwinkel in der horizontalen bzw. vertikalen Ebene sind.

$$E_{ref} = \int_{\alpha_1}^{\alpha_2} \int_{\Phi_1}^{\Phi_2} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} d\alpha d\Phi d\lambda G(\alpha, \Phi) J(\lambda) C \left(\Delta\Theta(\alpha, \Phi) - \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \tan \Theta_0 \right) \quad (3.2)$$

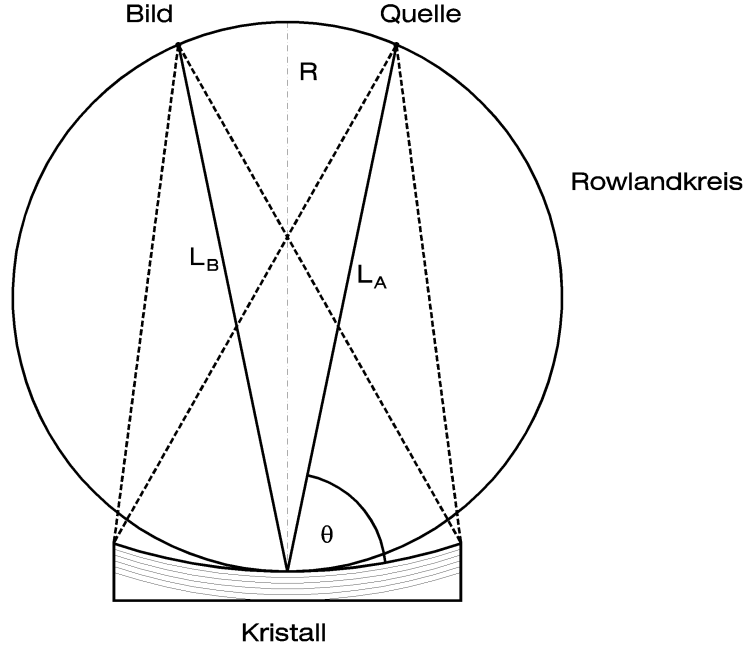


Abbildung 3.21: Fokussierung von Röntgenstrahlen mit 2-dimensional gekrümmten Kristallen. Der Abbildungsmaßstab ist 1:1 gewählt.

Die horizontale Ebene ist die Dispersionsebene. Die Funktion $J(\lambda)$ stellt die Energieverteilung der einfallenden Strahlung in Abhängigkeit von λ und die Funktion $G(\alpha, \Phi)$ die Energieverteilung der emittierten Röntgenstrahlung über α und Φ dar. Die Integrationsgrenzen von α und Φ werden durch die Geometrie der verwendeten Kristalle und Blenden bestimmt. Die Reflexionskurve des Kristalls $C\left(\Delta\Theta - \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \tan \Theta_0\right)$ ist die Braggwinkelabweichung der einfallenden Strahlen vom idealen Braggwinkel Θ_0 für eine Wellenlänge λ_0 . Die Abweichung vom idealen Braggwinkel wird durch die geometrische Ausdehnung des Kristalls und damit durch unterschiedliche Reflexionspunkte der Strahlung hervorgerufen. Für das Experiment sind Kristalle mit breiten Halbwertsbreiten der Reflexionskurve interessant, da diese eine große Winkelakzeptanz besitzen. Wählt man im Vergleich zu λ_0 eine kleine Wellenlängenabweichung $\Delta\lambda$ erhält man die differenzierte Bragg-Gleichung für ebene Kristalle und kleine Divergenzwinkel:

$$\Delta\Theta = \Theta - \Theta_0 \approx \alpha - \frac{\Phi^2}{2} \tan \Theta \quad (3.3)$$

Das spektrale Auflösungsvermögen des ebenen Kristalls wird durch Faktoren wie die Größe der Quelle, Eindringtiefe der Strahlung in den Kristall, Ortsauflösung des Detektors (Film, CCD) und insbesondere durch die Halbwertsbreite der Reflexionskurve Δ_{RK} bestimmt. Nach der differenzierten Bragg-Gleichung erhält man unter Vernachlässigung der anderen Faktoren die Beziehung:

Θ_0	$\Delta\Theta_{RK}$	$\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$
70°	48.3“	11730
50°	27.4“	8970

Tabelle 3.1: Berechnete Auflösung für eine Quarz(100) Kristall [16]

Θ_0	$\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$
70°	1400
50°	600

Tabelle 3.2: Experimentell ermittelte Auflösung für eine Quarz(100) Kristall; Quellgröße: 100 μm ; Abstand Quelle-Detektor: 50 cm [16]

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} = \frac{\tan \Theta}{\Delta\Theta_{RK}}. \quad (3.4)$$

Die Reflexionskurven wurden nach der dynamischen Theorie der Röntgenbeugung berechnet [63][64][65]. Die experimentelle Aufnahme der Kurven gestaltet sich schwierig, da ein paralleles monochromatisches Röntgenlicht erforderlich ist. Im allgemeinen kann ein solches Experiment mit Synchrotronstrahlung durchgeführt werden [66]. Für ebene Quarzkristalle können Werte für $\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$ von 10000 erreicht werden. In Tabelle 3.5.1 sind die berechneten Werte der Auflösung für einen Quarz(100) Kristall mit einem Netzebeneabstand $2d=8,5098\text{\AA}$ dargestellt.

Die experimentell ermittelten Werte für die Auflösung liegen um eine Größenordnung unter den berechneten, da durch die Ausdehnung der Quelle, dem Strahlversatz aufgrund der Eindringtiefe der Strahlung in den Kristall und der begrenzten Ortsauflösung des Detektors deutlich niedrigere Werte erreicht werden. In Tabelle 3.5.1 sind die erreichten Auflösungswerte für den Quarz(100) Kristall bei einer Quellgröße von 100 μm und einem Abstand Quelle–Detektor von 50 cm aufgelistet.

Um eine höhere Auflösung zu erreichen, muß mit einem möglichst großen Einfallswinkel $\Theta \approx 90^\circ$ und einem großen Abstand Quelle-Detektor gearbeitet werden.

3.5.2 Von Hamos Spektrometer

Zur spektralen Analyse der mit Femtosekunden-Laserimpulsen erzeugten Röntgenemission wurde ein VON HAMOS-Spektrometer [67] eingesetzt, daß sich gegenüber einem Spektrometer mit ebenem Kristall durch seine hohe Lichtstärke auszeichnet. Bei diesem Spektrometertyp wird ein zylindrisch gebogener Kristall eingesetzt um die Strahlung vertikal zur Dispersionsebene zu fokussieren.

Quelle und Spektrum liegen auf der Krümmungsachse des Kristalls. Die Netzebenen des Kristalls liegen parallel zur Oberfläche, sodaß analog zum ebenen Kristall eine symmetrische Braggreflexion an den Netzebenen erfolgt. Für die Strecken l_a (Quelle-Kristall) und l_b (Kristall-Detektor) folgt aus der Bragg-Gleichung die Beziehung

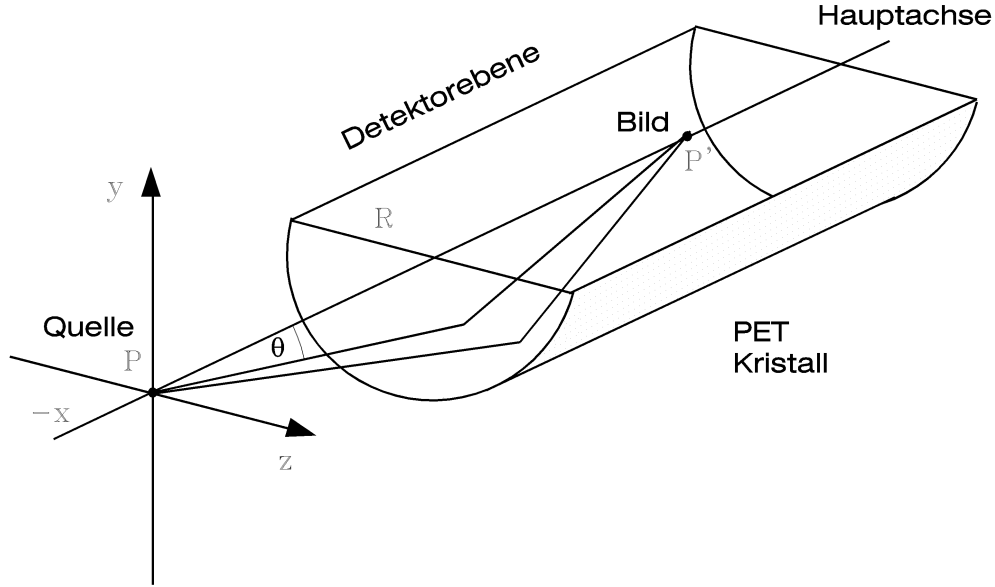


Abbildung 3.22: Schematischer Aufbau des von Hamos Spektrometers

$$l_a = l_b = \frac{R_v}{\sin \Theta}. \quad (3.5)$$

Aus dem Abstand Quelle-Detektor $l_c = \frac{2R_v}{\tan \Theta}$ erhält man die Dispersion

$$\frac{dl_c}{d\lambda} = \frac{dl_c}{d\Theta} \cdot \frac{\tan \Theta}{\lambda} = -\frac{4R_v}{\lambda \sin 2\Theta} \quad (3.6)$$

3.5.3 Gebogene Kristalle

Aufgrund der kurzen Wellenlänge der Röntgenstrahlung und den damit verbundenen Eigenschaften existieren nur wenige röntgenoptische Komponenten, wie Kristallspiegel, Zonenplatten und elastisch gebogene Kristalle, als fokussierende Elemente. Speziell zweidimensional gebogene Kristalle ermöglichen eine effektive Fokussierung von Röntgenstrahlung, analog zur reflektiven Optik im klassischen Spektralbereich. Im folgenden Kapitel werden die Möglichkeiten und Grenzen dieser Komponenten erläutert und experimentelle Befunde dargestellt.

Die Technik des elastischen Biegens von Kristallen [68] ermöglicht es dünne Kristallscheiben in die Form sphärischer oder sogar torischer Spiegel zu bringen. Die Netzebenen des Kristalls werden gekrümmt, sodaß eine Fokussierung von Röntgenstrahlung möglich wird. Diese Röntgenspiegel können, analog zu den optischen Spiegeln, für die entsprechende Anwendung optimiert werden. Insbesondere für die Anwendung mit ultrakurzen Röntgenimpulsen aus fs-Laserplasmen sind folgende Anforderungen wichtig:

- Hohe Reflektivität
- Große spektrale Bandbreite der Reflexion
- Große Apertur
- Keine zeitliche Verbreiterung der Impulse durch die Reflexion

In der Praxis sind die Anforderungen nur schwer zu vereinbaren. Als erster Schritt muß ein Kristall gewählt werden, der einen Netzebenenabstand ($2d$ -Abstand) aufweist, der im Bereich der Wellenlänge der Röntgenstrahlung liegt. Der daraus resultierende Bragg-Winkel sollte ca. zwischen 30° – 70° liegen um einerseits die Justage durch streifenden Einfall auf den Kristall nicht zu erschweren und andererseits genügend Abstand zwischen Quelle und Bildpunkt zu erhalten. Die kommerziell erhältlichen Einkristalle wie z. B. Quarz, Silizium, PET (Pentaerythritol), Glimmer etc. decken einen Wellenlängenbereich von ca. 4 \AA bis 10 \AA ab.

Für die Reflektivität der Kristallspiegel ist das integrale Reflexionsvermögen mit C_{max} dem Maximum und $\Delta\Theta_{RK}$ der Halbwertsbreite der Reflexionskurve, das entscheidende Kriterium:

$$R_{int} \approx C_{max} \Delta\Theta_{RK} \quad (3.7)$$

Dies sei an einem Beispiel verdeutlicht: Eine typische Halbwertsbreite einer Röntgenemissionslinie beträgt $\Delta\lambda_L \approx 10\text{-}20 \text{ m\AA}$. Die berechneten Kristallreflexionskurven für einen torischen und einen sphärischen Quarzkristall sind in Abbildung 3.23 dargestellt.

Die Halbwertsbreite Θ_{RK} beträgt ca. $50''$. Aus der differentiellen Bragg-Gleichung (3.4) erhält man eine spektrale Breite $\Delta\lambda$ der Reflexion von nur $1/100$ bis $1/10$ des $\Delta\lambda$ einer typischen Emissionslinie. Das integrale Reflexionsvermögen liegt bei zweidimensional gebogenen Kristallen im Bereich von $R_{int} \approx 10^{-4}$ rad. Für die Anwendung als Röntgenspiegel ist es von entscheidender Bedeutung möglichst viele Röntgenphotonen zu reflektieren und auf einen kleinen Fleck zu fokussieren. In Abbildung 3.5.3 ist eine Auswahl von Kristallen und die dazu korrespondierenden Röntgenwellenlängen dargestellt. Über spektrale Breite der Reflexion errechnet sich bei vorgegebener Photonenzahl (10^7 Photonen/Puls/rad in einer Spektrallinie) die Photonenausbeute.

Kristall	Röntgenlinie	$\Delta\lambda = \lambda \cot\Theta R_i$	Photonen/Puls
Quarz(100)	Al He_α	0.28 m\AA	28
Quarz(10-1)	Si He_α	0.35 m\AA	66
InSb(111)	Si K_α	2.9 m\AA	329
Ge(111)	Si He_β	1.4 m\AA	111
Si(111)	Si He_β	6.6 m\AA	44

Tabelle 3.3: Bandbreite und Photonenausbeute der Reflexion an ausgewählten Kristallen bei vorgegebener Photonenzahl [69]

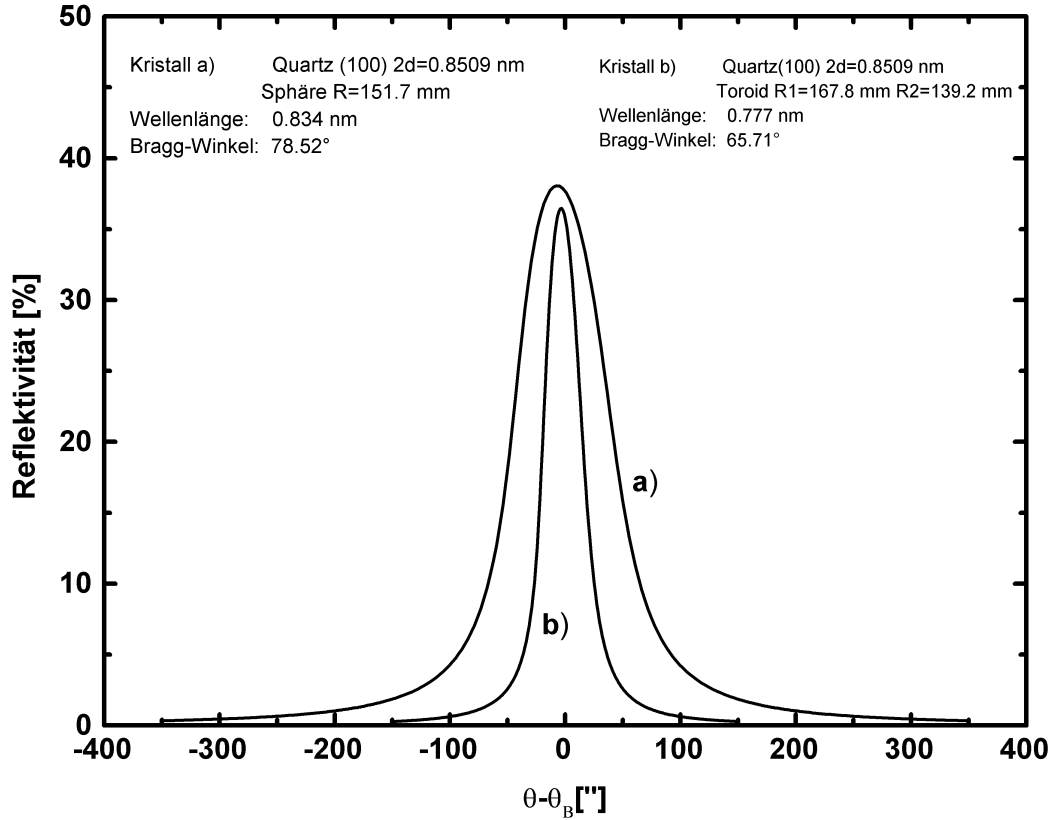


Abbildung 3.23: a) Reflexionskurve eines sphärisch gebogenen Kristalls Quarz(100). Optimierte für die Wellenlänge $\lambda = 0,834$ nm, Bragg-Winkel $\Theta = 78,52^\circ$. Sphäre $R=151,7$ mm; Netzebenenabstand: $2d=0,8509$ nm
b) Reflexionskurve eines torisch gebogenen Kristalls Quarz(100). Optimierte für die Wellenlänge $\lambda=0,777$ nm, Bragg-Winkel Netzebenenabstand: $2d=0,8509$ nm [66]

Auffallend sind im Vergleich zur klassischen Optik wiederum die großen Unterschiede in der Photonen ausbeute sowie der Halbwertsbreite der Reflexionskurve. Wie in Kapitel 3 noch dargestellt wird, tritt bei der Röntgenemission aus Femtosekunden-Laserplasmen starke Linienstrahlung auf. Man ist folglich darauf angewiesen eine starke Emissionslinie auszuwählen, um dann mit dem passenden Kristall, d. h. mit dem entsprechenden $2d$ -Abstand, die Strahlung zu fokussieren. Es ist deshalb nur in sehr begrenztem Umfang möglich die Kristalle primär nach hohen Werten für die Integrale Reflektivität auszuwählen. Ein weiterer Punkt ist die Halbwertsbreite der Reflexionskurve. Wie aus der Theorie und Messungen hervorgeht [70] besitzt ein elastisch verformter Kristall gegenüber einem ebenen Kristall eine geringere Halbwertsbreite. Als Beispiel seien die Reflexionskurven des sphärisch und des torisch gebogenen Kristalls in Abbildung 3.23 angeführt.

3.5.4 Abbildungseigenschaften gebogener Kristalle

Die mit Femtosekunden-Laserimpulsen produzierten Plasmen haben eine Ausdehnung von einigen Mikrometern. Man kann deshalb von punktförmigen Röntgenquellen sprechen. Eine ideale Punkt-zu-Punkt Abbildung wird im allgemeinen Fall nur mit einer Oberfläche in Form eines Rotationselipsoids erreicht. Aufgrund der schwierigen Herstellung der Oberflächen wird für begrenzte Aperturen und Einfallswinkel auf sphärische oder torische Oberflächen zurückgegriffen. Für eine Punkt-zu-Punkt Fokussierung mit einem torischen Kristall müssen der vertikale und der horizontale Krümmungsradius R_v und R_h die Bedingung in Gleichung 3.8 erfüllen:

$$\frac{R_v}{R_h} = \sin^2 \Theta_0 \quad (3.8)$$

In diesem Fall sind die beiden Brennweiten f_v und f_h identisch.

$$f_v = \frac{R_v}{2 \sin \Theta_0} \quad f_h = \frac{R_h}{2} \sin \Theta_0 \quad (3.9)$$

Für Einfallswinkel im Bereich von 80° – 90° sind die Abbildungsfehler eines sphärisch gebogenen Kristalls noch tolerierbar. Bei größeren Winkeln wandern vertikaler und horizontaler Fokus auseinander und es entsteht ein stark astigmatisches Bild. Zur Verdeutlichung ist in Abbildung 3.24 die mit einem Ray-Tracing Programm berechnete Bildgeometrie für einen sphärischen Kristall für einen Einfallswinkel von $78,4^\circ$ dargestellt. Die Bildebene wurde längs der Strahlrichtung verschoben um beide Fokalfpunkte darzustellen. Der Einfallswinkel der Reflexion entspricht dem Braggwinkel für die Aluminium K_α Linien.

Für die Abbildung der Aluminium He_α Linie wurde ein speziell für diese Geometrie erforderlicher torischer Kristall hergestellt um eine Punkt-zu-Punkt Abbildung zu realisieren. Wie Ray-Tracing Rechnungen zeigen [66], tritt bei den verwendeten Kristallaperturen (1 cm) und Quellgrößen ($\approx 100 \mu\text{m}$) kein Astigmatismus auf.

3.5.5 Zeitliches Verhalten der Bragg-Reflektion

Theoretische Modelle für den perfekten Kristall prognostizieren bei der Braggreflexion von ultrakurzen Röntgenimpulsen eine zeitliche Impulsverbreiterung [71][72]. In den Arbeiten werden drei Ursachen angeführt:

1. Die Röntgenstrahlung dringt aufgrund ihrer Energie in das Kristallvolumen ein. Im Gegensatz zur Reflexion in der klassischen Optik kann nicht mehr allein von einem Oberflächeneffekt gesprochen werden. Die Braggreflektion ist ein Volumeneffekt, wobei unterschiedliche Wege der Strahlung entstehen. Der reflektierte Impuls wird in Abhängigkeit von der Eindringtiefe in das jeweilige Kristallmaterial verbreitert. Für schwache Absorption, wie z. B. bei Quarz, gilt die Beziehung:

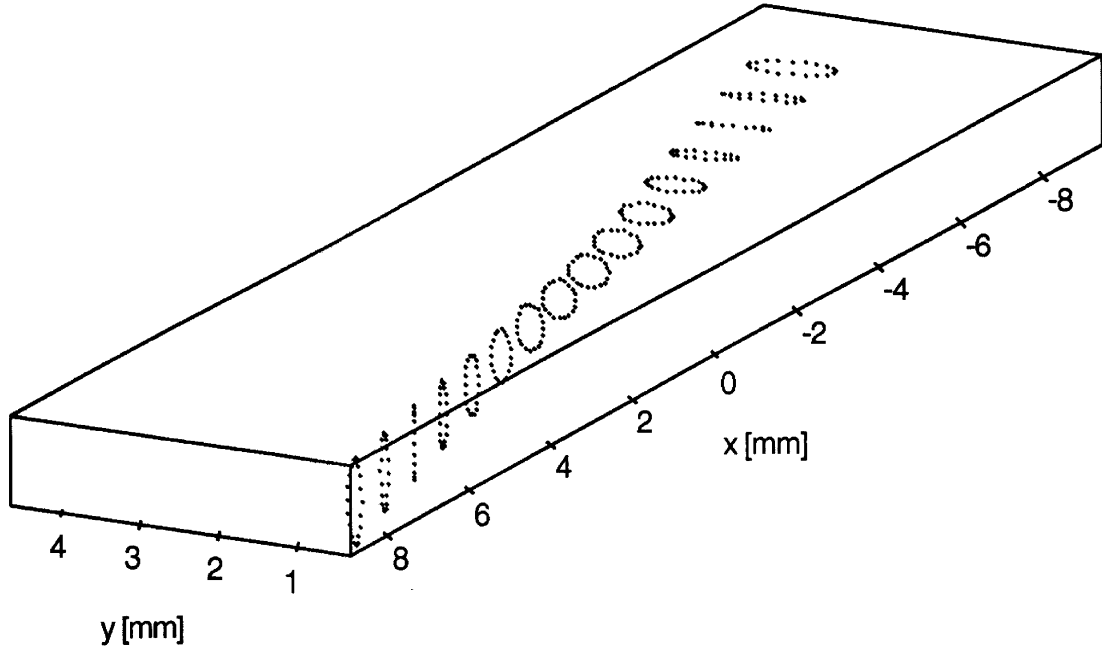


Abbildung 3.24: Berechnete Bildgeometrie für eine Sphäre. Einfallswinkel: $78,4^\circ$. Es ergeben sich zwei Fokalpositionen bei $f_H=148,58$ mm und $f_V=161,74$ mm.

$$\Delta\tau_1 = \frac{2t_e}{c \sin \Theta} \quad (3.10)$$

Hierbei stellt t_e die Eindringtiefe und der c die Lichtgeschwindigkeit dar. In Tabelle 3.5.5 ist die zeitliche Verbreiterung der reflektierten Röntgenimpulse für einen Silizium(111) Kristall bei einer Röntgenwellenlänge von $\lambda=3.151$ Å dargestellt.

Kristall	Röntgenlinie	Eindringtiefe Λ	Λ/c
Quarz(100)	Al He_α	$12 \mu\text{m}$	40 fs
Quarz(10-1)	Si He_α	$7.2 \mu\text{m}$	24 fs
InSb(111)	Si K_α	$1.6 \mu\text{m}$	5.3 fs
Ge(111)	Si He_β	$2.1 \mu\text{m}$	7.0 fs

Tabelle 3.4: Zeitliche Verbreiterung der reflektierten Röntgenimpulse, verursacht durch das Eindringen der Strahlung in den Kristall [16]

2. Die begrenzte Breite der Reflektionskurve $\Delta\Theta_{RK}$ des Kristalls führt zu einer zeitlichen Verbreiterung der reflektierten Impulse. Für Delta-Funktions artige Impulse gilt für die Röntgenimpulslänge:

$$\tau \geq \frac{\lambda^2/c}{\Delta\lambda} \quad (3.11)$$

Wobei $\Delta\lambda$ die Bandbreite und τ der Impulslänge darstellt. In Tabelle 3.5.5 ist die zeitliche Verbreiterung des Röntgenimpulses für Quarz- und InSb-Kristalle mit den dazu passenden Emissionslinien dargestellt.

Kristall	Röntgenlinie	$\Delta\lambda = \lambda \cot\Theta R_i$	τ
Quarz(100)	Al He_α	0.28 mÅ	≥ 70 fs
Quarz(10-1)	Si He_α	0.35 mÅ	≥ 41 fs
InSb(111)	Si K_α	2.9 mÅ	≥ 6 fs

Tabelle 3.5: Zeitliche Verbreiterung des Röntgenimpulses verursacht durch die Bandbreitebegrenzung der Braggreflexion [16]

3. Laufzeitunterschiede aufgrund der unterschiedlichen optischen Wege. Ray-Tracing Rechnungen, die an der Universität Jena in der Arbeitsgruppe Röntgenoptik durchgeführt wurden, liefern maximale Laufzeitdifferenzen von 120 fs für eine Aperturgröße von 50 mm bei einem Abstand von Punktquelle zu Kristall von 160 mm.

3.5.6 Herstellungsverfahren

Das Verfahren zur Herstellung und die Charakterisierung der Röntgenkristalle ist in den Arbeiten von I. Uschmann [68] und K. Gäbel [73] beschrieben. Hier soll nur kurz der Herstellungsprozeß dargestellt werden.

1. Kristall in ca. 350 μm dicke Scheiben schneiden. Parallelität zur Gitterebene besser 5“.
2. Aufkitten auf Träger und Prüfung der Ebenheit der Netzebenen mit Planwellentopographie.
3. Kristallscheiben polieren. Interferometrische Prüfung der Oberfläche. Planität muß besser als 1 Newton-Ring sein.
4. Scheiben auf nichtpolierter Seite auf $\leq 100 \mu\text{m}$ abdünnen.
5. Ansprengen des Kristalls auf konvexe Glasform.
6. Ankleben eines konkaven Kristallhalters und Aushärten des Klebers.
7. Lösen der Glasform und abschleifen des Kristallrandes.
8. Optischer Test der Kristalloberfläche.
9. Röntgenographischer Test des Kristalls.

Im Prinzip lassen sich beliebig große gebogene Kristalle herstellen. Limitierender Faktor ist die maximale Größe der erhältlichen Kristalle. Aufgrund ihrer elastischen Eigenschaften lassen sich die Kristalle nicht in beliebige Krümmungen biegen. Aus dem Elastizitätsmodul E_l und der kritischen Schubspannung ρ_k des Kristalls kann der maximale Durchmesser d_{max} des sphärisch zu biegenden Kristalls mit dem Biegeradius R angegeben werden:

$$d_{max} = 2\sqrt{\frac{6\rho_k}{E_l}}R. \quad (3.12)$$

Für Silizium beträgt der Wert für $\frac{\rho_k}{E_l} = 6 \cdot 10^{-4}$ [74]. Ein sphärisch gebogener Silizium-Kristall mit einem Krümmungsradius $R=300$ mm kann einen maximalen Durchmesser von 36 mm erreichen.

Für torisch gebogene Kristalle kann die maximale Kristallfläche über den vertikalen Krümmungsradius R_v abgeschätzt werden [68] mit der Beziehung:

$$A_{max} \leq \left(\frac{R_v}{10}\right)^2 \quad (3.13)$$

Das rechteckige Kristallsubstrat sollte dabei das Aspektverhältnis von 1:5 nicht unterschreiten.

Zweidimensional gebogene Quarzkristalle mit einem Durchmesser von 100 mm sind bereits realisiert worden. Aufgrund der Eigenschaften der Braggreflexion ergeben sich jedoch physikalische Grenzen für sinnvolle Aperturgrößen. Die geringe Wellenlängenakzeptanz und somit auch Braggwinkelvariation führt zu einer vorgegebenen Geometrie des Kristallspiegels. Die Möglichkeiten und Grenzen der Kristalloptik werden in Kapitel 4 diskutiert.

4. Experimente

4.1 Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen

In dem folgenden Kapitel wird der experimentelle Aufbau zur Erzeugung der optischen höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen beschrieben. Die Ergebnisse der Messungen werden vorgestellt und anhand der bestehenden theoretischen Modelle diskutiert.

4.1.1 Experimenteller Aufbau

In Abbildung 4.1 ist eine Skizze des experimentellen Aufbaus dargestellt. Die ultrakurzen Laserimpulse wurden auf ein ebenes Targets substrat fokussiert. Das Target wurde kontinuierlich verschoben um jedem Impuls eine intakte Oberfläche zur Verfügung zu stellen. Das spekular reflektierte Licht wurde mit einem torischen Gitter mit 550 Linien/mm spektral zerlegt. Für die Detektion wurde ein Phosphorschirm eingesetzt. Die Phosphorlumineszenz wurde mit Hilfe von zwei lichtstarken Fotoobjektiven auf eine Diodenzeile abgebildet.

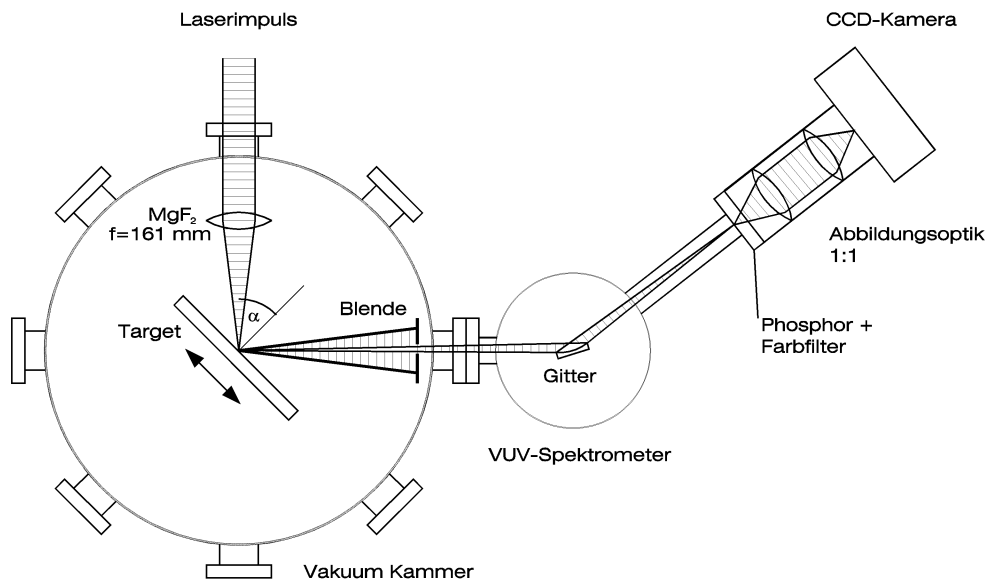


Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau zur Messung der höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen. Die Abbildung zeigt den Meßaufbau mit der Magnesiumfluorid Linse als Fokussieroptik und dem modifizierten VUV-Monochromator.

Aufgrund der hohen Intensität der ultrakurzen Laserimpulse konnte nur bis zu einer Energie von ca. 20 mJ mit einer Linse fokussiert werden. Bei höheren Lichtintensitäten und somit hoher Feldstärke \vec{E} , treten in dem Linsenmaterial optische nichtlineare Effekte auf. Der Zusammenhang zwischen Feldstärke \vec{E} und induzierter elektrischer Polarisation

\vec{P} im optischen Material folgt nicht mehr dem linearen Zusammenhang

$$\vec{P} = \chi \vec{E} \quad (4.1)$$

mit χ als Proportionalitätsfaktor, sondern es treten weitere Glieder mit höheren Potenzen auf. Für die induzierte Polarisation wird eine Potenzreihe angesetzt in der das erste Glied die linearen optischen Effekte beschreibt, d. h. das Superpositionsprinzip ist gültig.

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (4.2)$$

Die optische Nichtlinearität erster Ordnung wird durch den Suszeptibilitätstensor $\chi^{(3)}$ beschrieben. In optisch transparenten Materialien wird bei hinreichend hohen Laserfeldern die Phase des Laserimpulses verändert. Dieser intensitätsabhängige Effekt führt zur Zerstörung des Strahlprofils, Selbstfokussierung und Zerstörung des Materials. Als Kriterium für die Auswahl des optischen Materials gilt der nichtlineare Brechungsindex n_2 . Das verwendete Magnesiumfluorid weist von allen optischen Materialien den geringsten nichtlinearen Brechungsindex [75] auf. Ein Maß für die Beeinflussung des Laserimpulses durch den nichtlinearen Brechungsindex ist der Phasenfaktor:

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I(t) z \quad (4.3)$$

Ein Maß für die Phasenaberration ist der Wert von Φ . Der Phasenfaktor sollte nicht größer als 1 sein [76]. Bei einem Laserimpuls der Wellenlänge von 800 nm, der Impulsdauer von 100 fs, Strahldurchmesser von 25 mm und einer Energie von 30 mJ errechnet sich für ein gaußförmiges Strahlprofil eine Intensität von $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$. Mit dem nichtlinearen Brechungsindex $n_2 = 1,15 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ für Magnesiumfluorid ergibt sich für die verwendete Linse ein Phasenfaktor Φ von 1,4. Aus diesem Grunde wurde für die Messungen mit einer Impulsenergie größer 30 mJ reflektive Optik eingesetzt. Der verwendete außeraxiale Parabolspiegel mit der Brennweite $f=76,2 \text{ mm}$ minimiert die Abbildungsfehler, erfordert jedoch gegenüber der Linse einen erheblich höheren Justageaufwand. Die Spitzenintensität im Fokus betrug maximal 10^{17} W/cm^2 .

Die in spekularer Richtung emittierten Harmonischen wurden mit einem torischen Gitter fokussiert und spektral zerlegt. Der geometrische Aufbau wurde so gewählt, daß eine 1:1 Abbildung von der Targetebene zum Phosphorschirm realisiert werden konnte. Um die Grundwelle des Laserlichts abzublocken wurde eine kreisförmige Scheibe in der Strahlmitte des einfallenden Strahls und eine Irisblende vor dem Spektrometer positioniert. Durch dieses, bei der Erzeugung von Harmonischen in Gasen erprobte Schema, gelangen nur die in spekularer Richtung emittierten Harmonischen in das Spektrometer. Betrachtet man einen Laserimpuls mit ungestörten Phasenfronten, so skaliert der Strahldurchmesser der Harmonischen der Ordnung n mit $n^{-1/2}$ [77]. Durch den in Abbildung 4.2 dargestellten Aufbau wird die Lasergrundwelle effektiv unterdrückt, während die höheren Harmonischen verlustfrei detektiert werden können. Visuelle Beobachtungen während der Messungen zeigten ein ringförmiges Bild der Fundamentalen auf der Irisblende vor dem Spektrometer. Auf einem an gleicher Stelle positionierten Schirm

konnte in spekularer Richtung die zweite Harmonische beobachtet werden. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß die Irisblende nicht Eingangsspalt des Spektrometers ist, sondern nur als Strahlblocker dient.

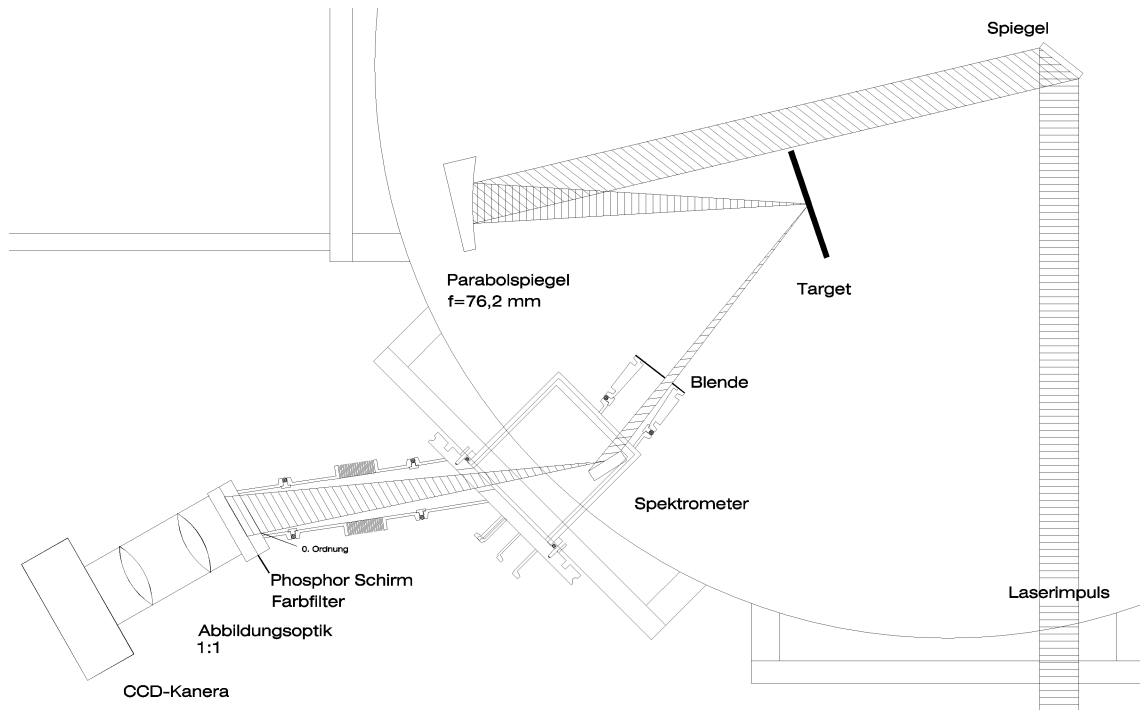


Abbildung 4.2: Modifizierter Aufbau zur Messung der höheren Harmonischen. Bei dem Meßaufbau wurde ein torisches Gitter zur stigmatischen Abbildung der Harmonischen eingesetzt. Die Fokussierung der Grundwelle erfolgt mit einem außeraxialen Parabolspiegel.

Als Detektor für die UV- und XUV-Strahlung wurde eine Glasplatte, die mit einem Phosphor ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$) beschichtet war, eingesetzt.

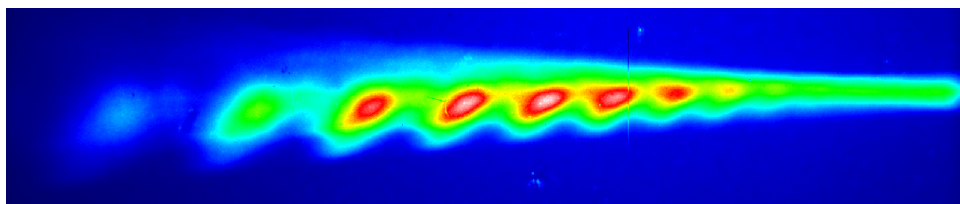


Abbildung 4.3: Spektrum der 4. bis 14. Harmonischen, aufgenommen mit dem VUV-Spektrometer und der Detektorkombination Phosphor/CCD

Für die 1:1 Abbildung des Phosphorschirms auf eine Diodenzeile, oder wahlweise, eine CCD-Kamera, wurden zwei lichtstarke Kameraobjektive eingesetzt (Canon FD85 mm 1:1.2 Aspherical). Die auf -20°C (Diodenzeile EG&G OMA III) bzw. -40°C (CCD PI CCD-1024TK mit Chip SITe TK1024T) gekühlten Detektoren ermöglichten Integrationszeiten von bis zu einer Stunde bei geringem thermischen Rauschen des Detektors.

Abbildung 4.3 zeigt ein 2-dimensionales Spektrum der Harmonischen aufgenommen mit dem CCD-Detektor.

4.1.2 Spektren p-pol. Anregeimpuls

In Abbildung 4.4 ist ein Spektrum der höheren Harmonischen bis zu 17. Ordnung (26,4 eV, $\lambda = 47$ nm) der Grundwellenlänge 800 nm des verwendeten Titan-Saphir-Lasers dargestellt. Der p-polarisierte Laserimpuls (bezogen auf die Einfallsebene) mit einer Energie von 22 mJ wurde unter dem Einfallswinkel von 68° auf das Target fokussiert. Als Targetmaterial wurde eine polierte Glasscheibe verwendet. Für die Fokussierung wurde ein außeraxialer Parabolspiegel mit einer Brennweite von 76,2 mm bei 800 nm verwendet. Die Integrationszeit betrug 5 s, was bei einer 10 Hz Repetitionsrate des Lasers 50 Impulsen entspricht. Die Messung zeigt gerade und ungerade Harmonische, wie auch die in Kapitel 2 vorgestellten Modellrechnungen voraussagen.

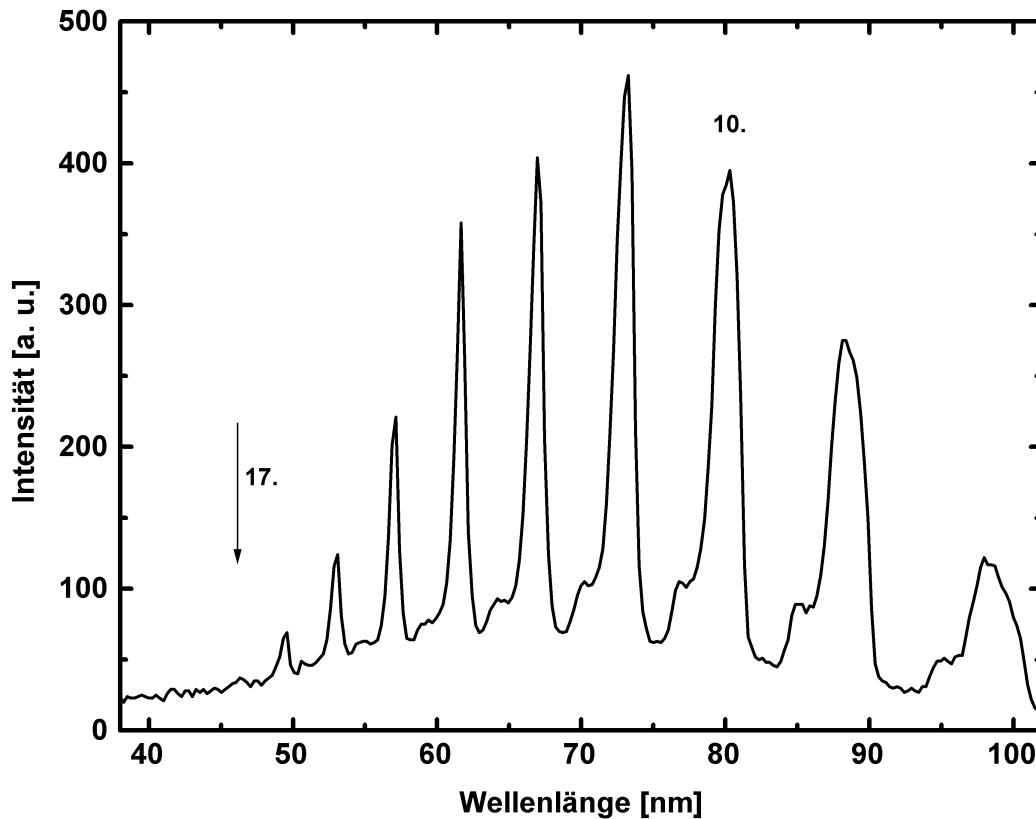


Abbildung 4.4: Spektrum der Harmonischen, Glas-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 22 mJ, Impulsdauer: 140 fs

Der glockenförmige Intensitätsverlauf ist auf die Abbildungseigenschaften der verwendeten Abbildungsoptik zurückzuführen. Weiterhin erhält man bei dem torische Gitter nur bei dem Abbildungswinkel von $72,5^\circ$ eine stigmatisches Bild. Das Spektrum erstreckt sich über 25 mm und ist in den Randbereichen verformt. Eine genaue Auswertung der

Intensitäten der Harmonischen, unter Berücksichtigung der Abbildungseigenschaften des Spektrometers, ist in Abbildung 4.5 dargestellt.

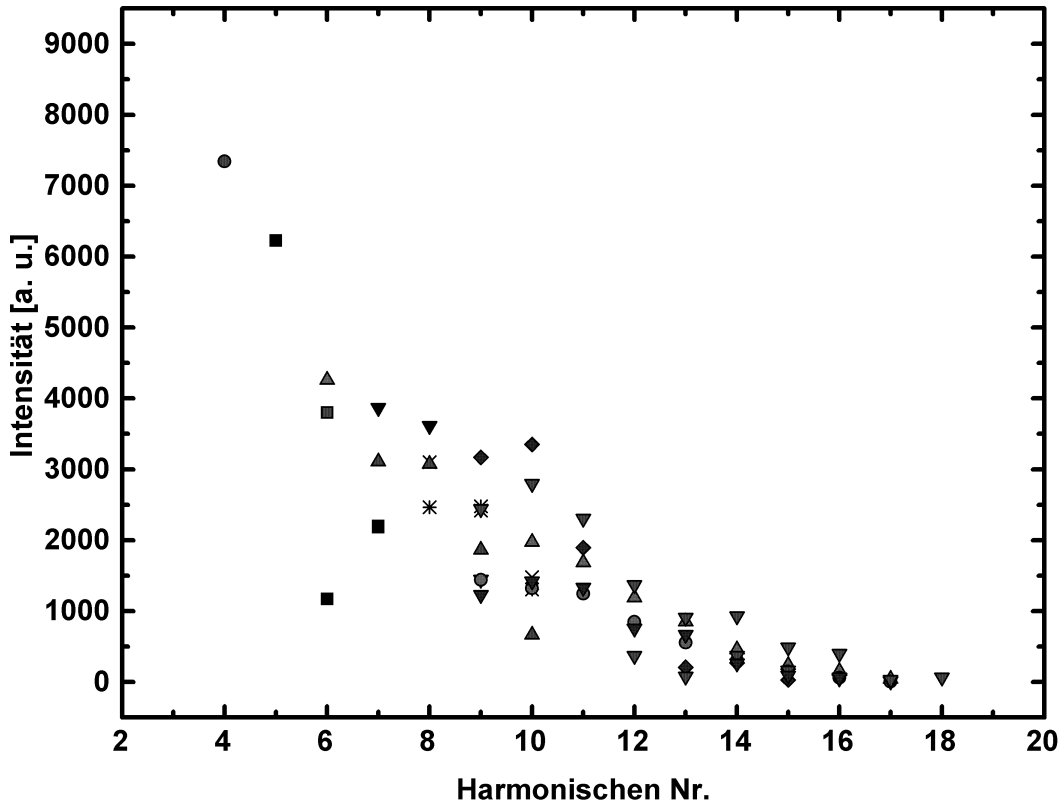


Abbildung 4.5: Intensität der Harmonischen in Abhängigkeit von der Ordnung der Harmonischen.

Für p-polarisiertes Licht zeigen die Harmonischen zu höheren Ordnungen hin einen monotonen Abfall der Intensität. Der experimentelle Befund wird von den PIC-Rechnungen [78] unterstützt. Im Gegensatz zu der Erzeugung von Harmonischen in Gasen tritt keine typische 'cut-off' Frequenz auf. Die Intensität der Harmonischen ist aufgrund der nicht hinreichend genau bekannten Eigenschaften des Phosphordetektors nur etwa auf eine Größenordnung genau anzugeben (siehe 3.4.3). Unter diesen Voraussetzungen ergibt eine Abschätzung der Photonenausbeute der Harmonischen Werte von 10^8 bis 10^9 Photonen/Impuls für die 10. bzw. 15. Harmonische. Daraus ergeben sich Konversionseffizienzen von 10^{-9} bis 10^{-8} .

Aufgrund des Erzeugungsmechanismus der Harmonischen sollte die Strahlung kohärent sein. Experimente zur Messungen der zeitlichen und räumlichen Kohärenz der Harmonischen niedriger Ordnung sind bereits durchgeführt worden [8][79]. Dies hat zur Folge, das das Produkt aus Wellenlänge und Bandbreite konstant sein muß, oder anders ausgedrückt mit zunehmender Ordnung der Harmonischen wird die Halbwertsbreite des Spektrum geringer [80]. Unsere Messungen bestätigen die Annahme zu Harmonischen höherer Ordnung hin. In Abbildung 4.6 ist die Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der

Ordnung der Harmonischen aufgetragen. Der Abfall der Intensität der Harmonischen mit der Ordnung ist reziprok zum Quadrat der Halbwertsbreite der Wellenlänge.

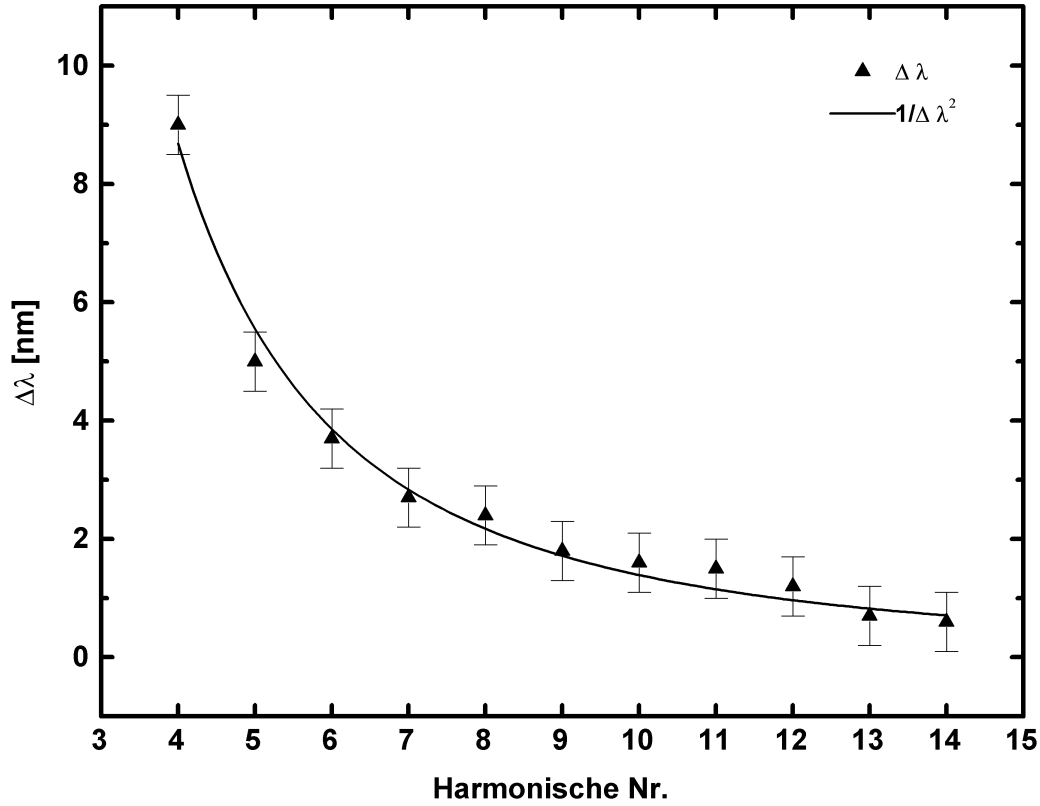


Abbildung 4.6: Halbwertsbreite des Spektrums der Harmonischen in Abhängigkeit von der Ordnung der Harmonischen.

Die in Abbildung 4.4 zu beobachtenden Nebenmaxima der Harmonischen sind auf den die spektrale Verteilung des anregenden Laserimpulses zurückzuführen. In Abbildung 4.7 ist das Spektrum des verwendeten Titan-Saphir Lasers abgebildet. Aufgrund des nicht-linearen Mechanismus der Erzeugung Harmonischer spiegelt sich das Spektrum verzerrt in den einzelnen Harmonischen wieder. Dies ist gleichzeitig ein Indiz dafür, daß es sich bei der UV-Strahlung ebenfalls um kohärente Strahlung handelt.

Wie bereits erwähnt wurde, ist für die Erzeugung von höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen die Qualität der Laserimpulse von entscheidender Bedeutung. Wie in Kapitel 2 erläutert wird, ist zur Generierung der Harmonischen ein steiler Plasmadichte Gradient zwingend erforderlich. Extrem steile Gradienten können nur mit einem ultrakurzen Laserimpuls generiert werden. Voraussetzende Impulse können ein Vorplasma generieren, in das der eigentliche fs-Laserimpuls einkoppelt. Die Strahlqualität des Impulses bestimmt die erreichbare Intensität im Fokus. Bei dem in Abbildung 4.8 dargestellten Spektrum ist dem anregenden fs-Impuls ein ps-Untergrundimpuls überlagert. Das Spektrum weist ebenfalls einen deutlichen Untergrund auf, der durch Strahlung aus dem Plasma hervorgerufen wird. Um auszuschließen, daß der Untergrund durch

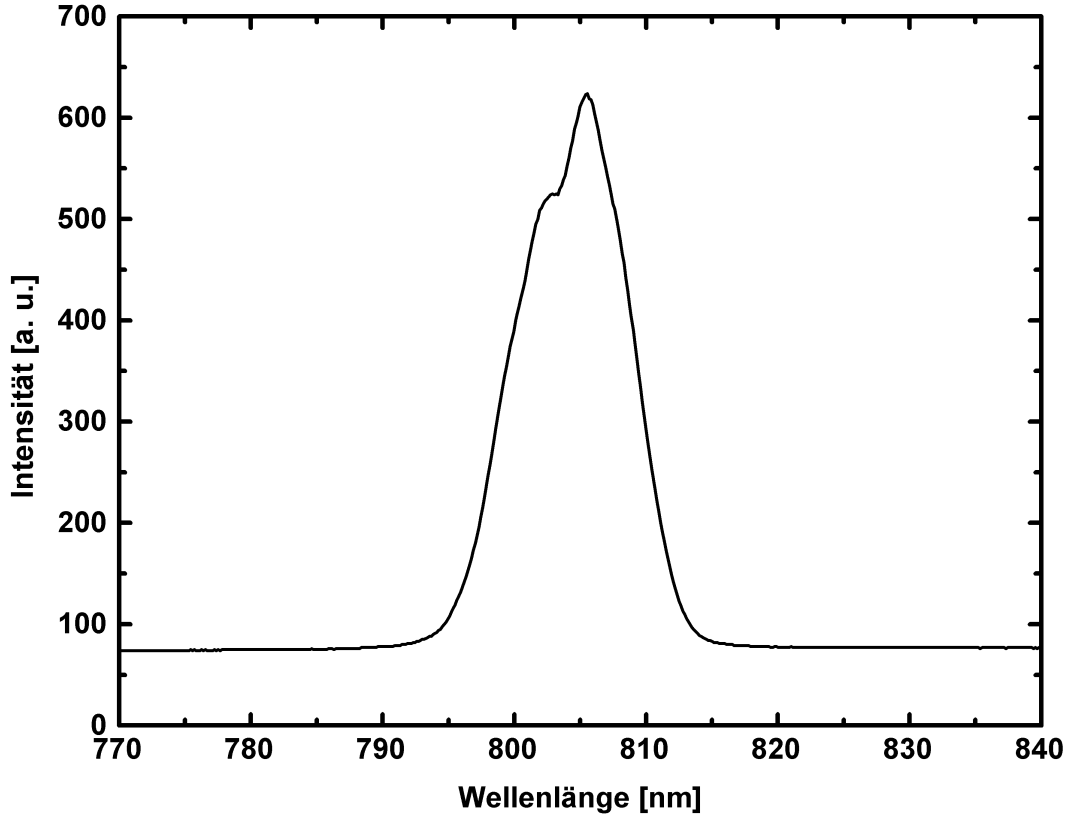


Abbildung 4.7: Spektrum des Ti:Saphir-Lasers nach der Kompressionsstufe, Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 30 mJ, Impulsdauer: 140 fs

Streulicht der Grundwelle hervorgerufen wird, wurde zwischen Gitter und Detektor ein Aluminiumfilter eingesetzt. Das Filter besteht aus einer auf einem Trägergitter aufgebracht 1500 Å dicken Aluminiumschicht. Die optische Transmission im sichtbaren Spektralbereich beträgt $\leq 5 \times 10^{-8}$ [81].

Aufgrund von Oxydation des Aluminiums an Luft verändern sich die Transmissionseigenschaften des Filters im VUV-Wellenlängenbereich. Das Filter wurde deshalb unmittelbar vor der Messung mit einem VUV-Meßplatz vermessen. Hierdurch wurde auch sichergestellt, daß kein sichtbares Licht, z. B. durch Mikroperforation des Materials, durch das Filter gelangt. In Abbildung 4.9 ist die Transmissionskurve für den Wellenlängenbereich von 40 nm bis 110 nm dargestellt.

Das in Abbildung 4.10 abgebildete Spektrum wurde mit den gleichen Laserparametern wie das in Abbildung 4.8 aufgenommen. Durch das Aluminiumfilter vor dem Detektor werden die langwelligen Harmonischen abgeblockt. Es tritt jedoch keine Reduzierung des Untergrunds auf. Das durch den Vorpuls generierte Plasma emittiert Strahlung im gesamten VUV-Bereich und wird dem Spektrum der Harmonischen überlagert. Am kurzwelligen Ende des Spektrums tritt eine Linie bei der Wellenlänge von 38 nm auf. Die gleiche Linie ist auch in Abbildung 4.8 erkennbar. Neuere Rechnungen von LICHTERS ET AL- [78] und Experimente von TEUBNER ET AL- [82] zeigen, daß die Wellenlänge

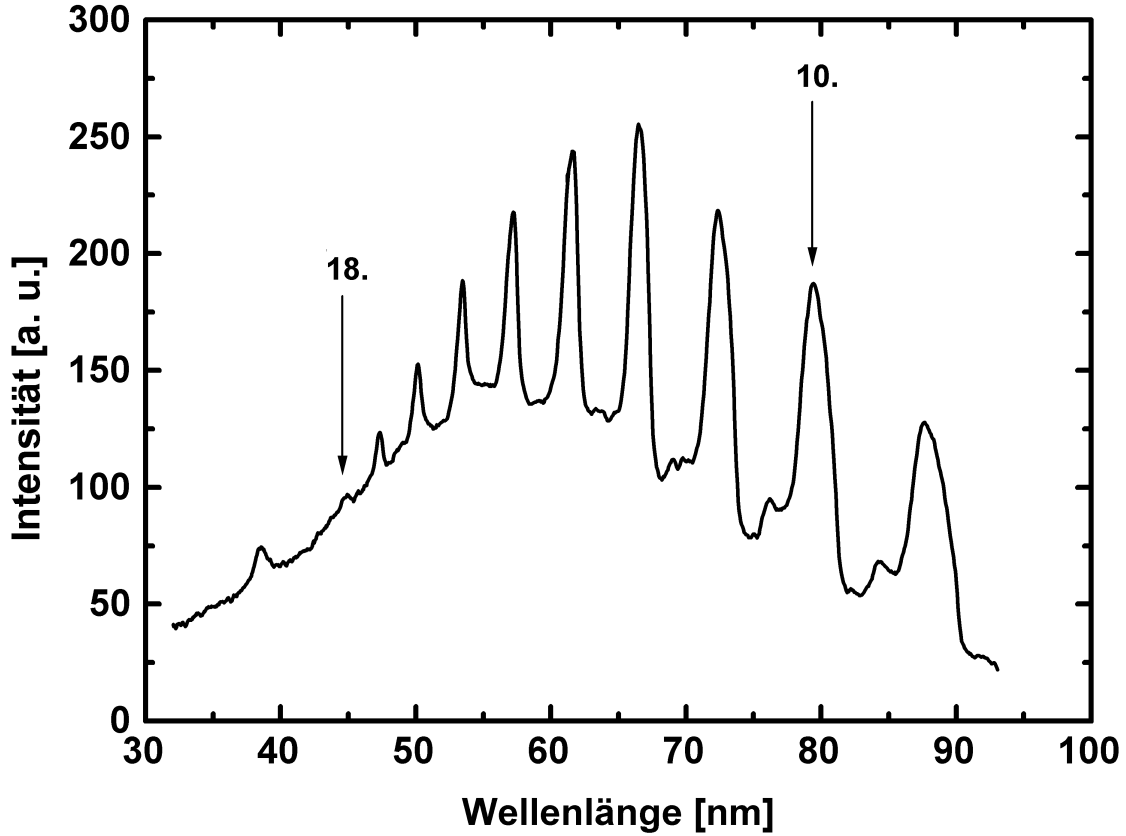


Abbildung 4.8: Spektrum der Harmonischen, Glas-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 30 mJ, Impulsdauer: 140 fs

der doppelten Plasmafrequenz $2\omega_p$ entspricht. Als Ursache der Strahlung werden superheiße Elektronen mit Energien im keV bis MeV Bereich angeführt. Die Elektronen werden bei p-polarisiertem Licht und einem Einfallswinkel im Bereich um die 45° durch stoßfreie Absorptionsmechanismen erzeugt [83]. In steilen Plasma-Vakuum Gradienten werden die Elektronen durch das extrem hohe elektrische Feld des Laserimpulses im ersten Teil der Lichtwelle aus dem Targetmaterial herausgerissen. Aufgrund des starken elektrischen Felds, das durch die Ladungstrennung hervorgerufen wird, werden die Elektronen im zweiten Teil der Lichtwelle wieder in das Plasma injiziert. Die Elektronenimpulse können starke Plasmawellen mit Plasmafrequenzen bis zur Plasmafrequenz ω_p anregen. Aus der Plasmafrequenz $2\omega_p$ läßt sich die Elektronendichte bestimmen. Für unsere Experimente ergeben sich Elektronendichten von $\approx 2 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$.

Der Einfluß der Laserparameter auf die Erzeugung von höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen wird durch die Experimente an einem fs-Lasersystem (Salle Jaune) mit einem Kontrastverhältnis von Spitzenenergie zum Vorpuls von 1:100 deutlich. Der Oszillator des Lasersystems liefert eine Impulsdauer (FWHM) von 60 fs. Nachdem der Impuls die Verstärkerkette durchlaufen hat und auf eine Impulsenergie von 100 mJ verstärkt wurde, ist eine Komprimierung auf die ursprüngliche Impulsdauer nicht mehr möglich. Die hinter der letzten Verstärkerstufe aufgenommene Autokorrelationsfunktion

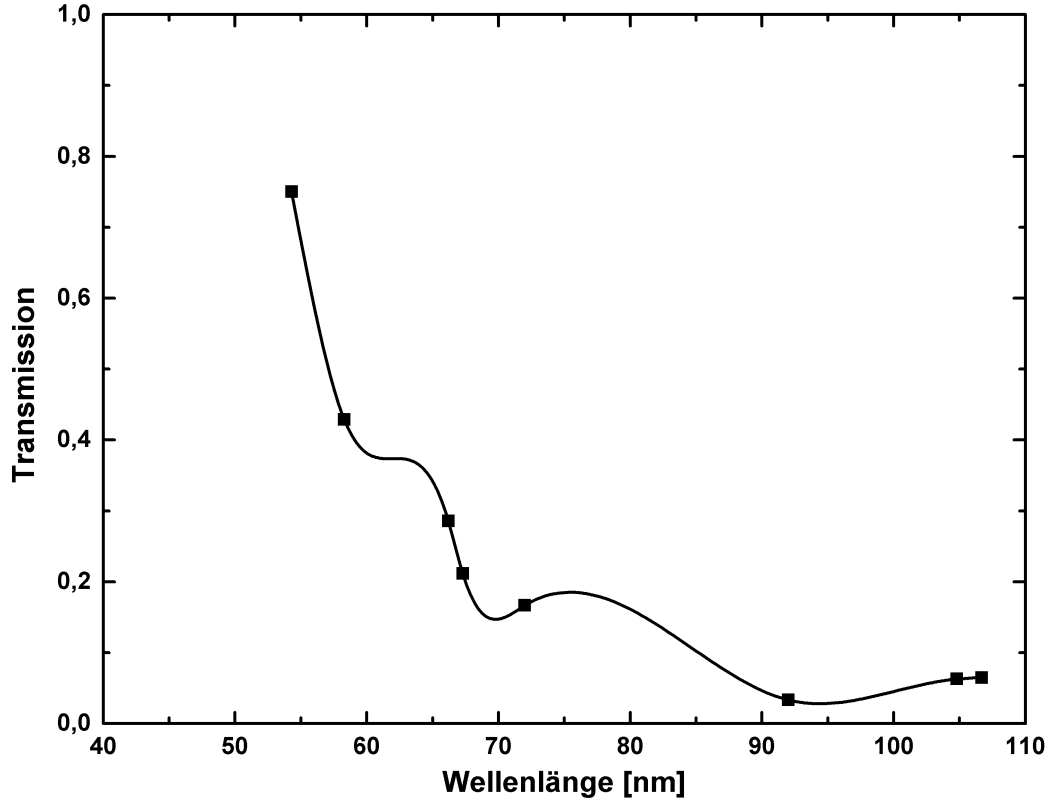


Abbildung 4.9: Transmissionskurve des Aluminiumfilters TF-100 (Dicke: 1500 Å) im VUV-Spektralbereich von 50 nm bis 110 nm

in Abbildung 4.11 macht deutlich, daß ca. 1 ps vor dem eigentlichen fs-Impuls Strahlung vorhanden ist. Die Intensität liegt dabei nur etwa zwei Größenordnungen unter der Spitzenintensität. Bei Spitzenintensitäten im Fokus von 10^{17} W/cm² wird damit deutlich die Schwelle der Plasmabildung an Festkörperoberflächen überschritten. Im Gegensatz dazu fällt die Autokorrelationsfunktion des fs-Lasersystems (Salle Verte) über mehrere Größenordnungen steil ab. Der begrenzende Faktor ist der ca. 6 Größenordnungen umfassende Dynamikbereich des verwendeten Autokorrelators. Das Kontrastverhältnis des Lasersystems beträgt somit mindestens $1:10^6$. Die Ergebnisse bei der Erzeugung von Harmonischen (siehe Abbildung 4.4) zeigen klar ausgebildete Harmonische mit geringer Untergrundstrahlung.

Die Meßergebnisse mit dem fs-Lasersystem (Salle Jaune) in Abbildung 4.12 zeigen starke Linienstrahlung. Die 9. Harmonische ist noch eindeutig identifizierbar. Zu kürzeren Wellenlängen hin werden die Harmonischen durch Plasmalinien überdeckt. Eine Identifizierung der Linien ist aufgrund des begrenzten Auflösungsvermögens des Gitters nur eingeschränkt möglich. Die Auflösung wird durch die Quellgröße des Emissionsgebiets beschränkt, da ein Spektrometer ohne Eingangsspalt verwendet wurde. Aus dem gleichen Grund ist im Bereich des kurzwelligen Endes des Spektralbereichs bei 40 nm die Unterdrückung der 0. Ordnung nur unzureichend möglich.

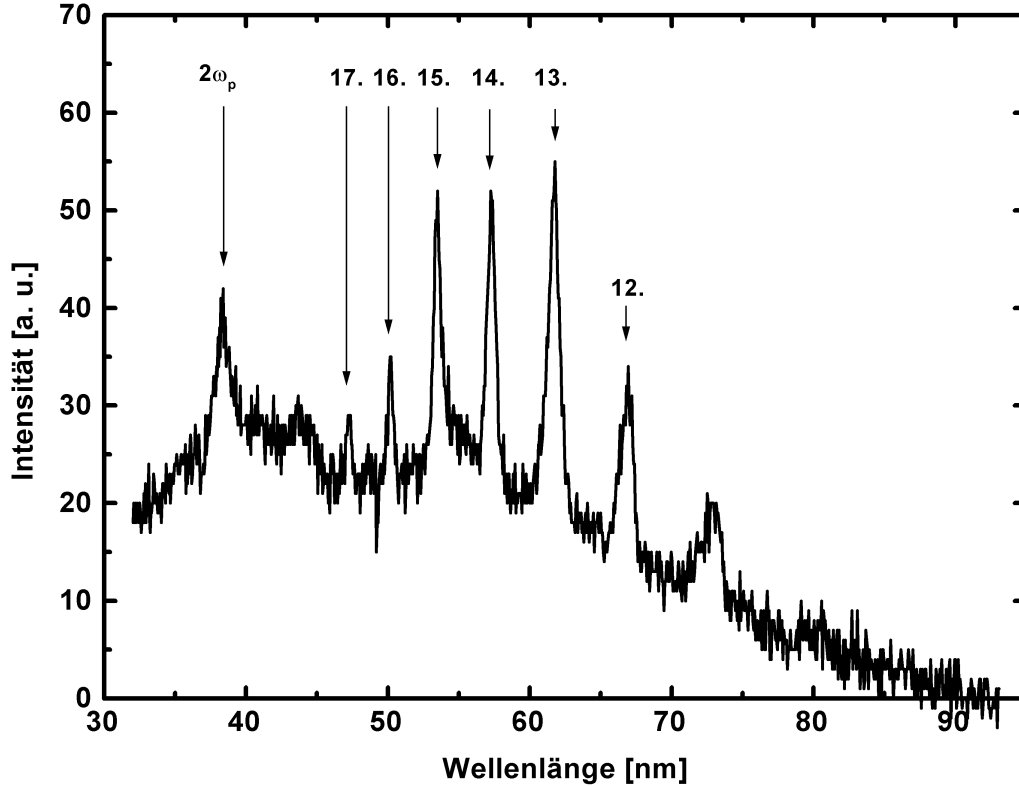


Abbildung 4.10: Spektrum der Harmonischen, Glas-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 30 mJ, Impulsdauer: 140 fs, Aluminiumfilter TF100

In Abbildung 4.13 ist als Targetmaterial Aluminium verwendet worden. Die Linienemission in Abbildung 4.13 unterscheidet sich deutlich von der Emission des Glastargets. Im Gegensatz zu den Harmonischen ist die Plasmalinienemission typisch für das Targetmaterial.

4.1.3 Spektren s-polarisierte Anregimpulse

Die Simulationsrechnungen [78] zeigen Harmonische für s-polarisiertes anregendes Licht. Die maximale Intensität der Harmonischen liegt jedoch eine Größenordnung unter den mit p-polarisierten Licht erzeugten Harmonischen. Da die Normalkomponente des elektrischen Feldes des einfallenden s-polarisierten Lichts verschwindet, ist nur die ponderomotorische Kraft für die Harmonischen Erzeugung verantwortlich. Die ponderomotorische Kraft nimmt bei zunehmendem Einfallswinkel ab und die Harmonischen verschwinden bei streifendem Einfall. Für den experimentellen Nachweis wurde die Polarisation des p-polarisierten Laserimpulses mit zwei Spiegeln um 90° gedreht. In Abbildung 4.14 ist das Spektrum dargestellt. Im Gegensatz zu Abbildung 4.12 waren bei bis auf die Integrationszeit gleichen experimentellen Bedingungen keine Harmonischen meßbar. Die Plasmalinien im kurzwelligen Bereich sind identisch, wobei in Abbildung 4.14 das Spektrometer nicht optimal justiert war und so eine schlechtere Auflösung hatte. Aufgrund

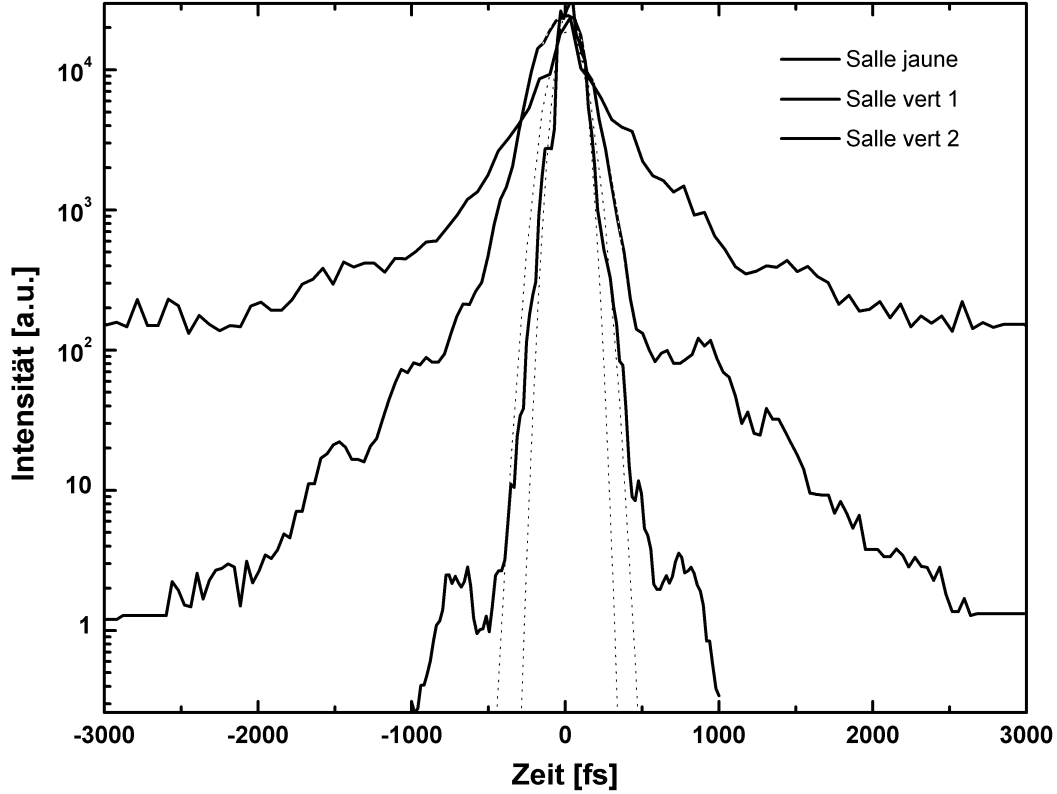


Abbildung 4.11: Autokorrelationsfunktion, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsdauer: 60 fs

der schwächeren Intensität der Harmonischen gegenüber der p-polarisierten Anregung konnten die Harmonischen nicht aus der Linienstrahlung herausgefiltert werden. Ein weiter Grund ist das Kontrastverhältnis des Lasers. In Abbildung 4.11 ist die Autokorrelationsfunktion des fs-Lasers dargestellt.

Durch den hohen Impulsuntergrund wird ein Vorplasma erzeugt und somit die Erzeugung der Harmonischen gestört. Da bei s-polarisierter Anregung außerdem höhere Energien nötig sind, wird die Plasmaschwelle schon besonders früh erreicht. Bei den Experimenten konnte aus diesem Grund bei der Harmonischenerzeugung mit p-polarisiertem Licht bei niedrigen Laserenergien bessere Ergebnisse erzielt werden als bei intensiverer Strahlung. Dieser Befund steht im Einklang mit den Modellrechnungen, die bei hohen Laserintensitäten ein starkes Anwachsen der Harmonischen beschreiben, aber gleichzeitig ein hohes Kontrastverhältnis des Lasers voraussetzen.

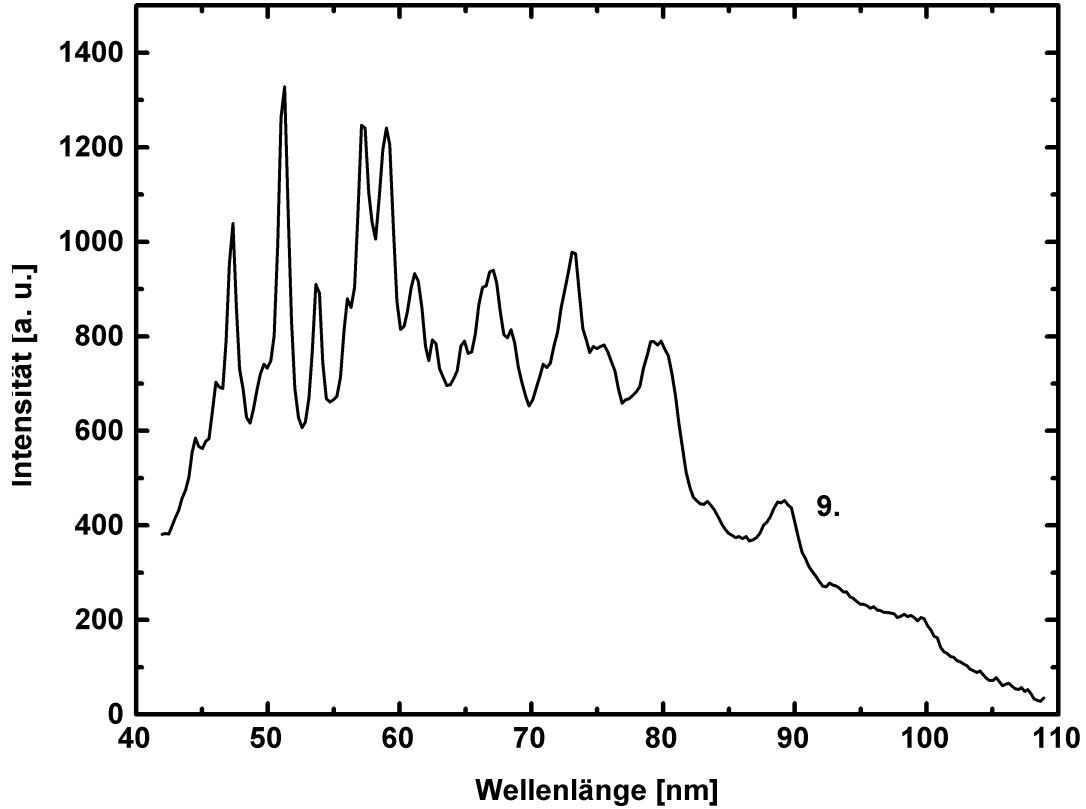


Abbildung 4.12: Spektrum der Harmonischen, Glas-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 100 mJ, Impulsdauer: 60 fs

4.2 Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen

Die Experimente zur Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen wurden an einem Farbstoff-Lasersystem durchgeführt. Das fs-Lasersystem besteht aus einem passivmodengekoppelten CPM-Farbstofflaser mit nachgeschalteten Verstärkerstufen. Die Laserimpulse der Wellenlänge von $\lambda = 620$ nm werden durch drei Farbstoff-Verstärkerstufen auf eine Energie bis zu 3 mJ verstärkt. Eine Beschreibung des Lasers findet sich in [84]. Wie bereits mehrfach erwähnt wurde ist das zeitliche und räumliche Intensitätsprofil der Lichtimpulse von entscheidender Bedeutung. Eine genaue Charakterisierung der verstärkten Laserimpulse ergab ein gaußförmiges Strahlprofil, das beugungsbegrenzt fokussierbar ist [23]. Die gemessene Intensitäts-Autokorrelationsfunktion zeigt ein Kontrastverhältnis von Spitzenintensität zu Impulsuntergrund von besser als 4×10^8 . Die Dynamikgrenze des Autokorrelators beschränkte die Messung auf diesen Wert. Die Impulsdauer entspricht 90 fs bei einer Halbwertsbreite der Autokorrelationsfunktion von 140 fs auf eine sech²-förmige Impulsform bezogen.

In Abbildung 4.15 ist der experimentelle Aufbau zur Messung der Röntgenemission dargestellt.

Die Laserimpulse wurden unter einen Einfallswinkel von 45° zur Festkörperoberfläche

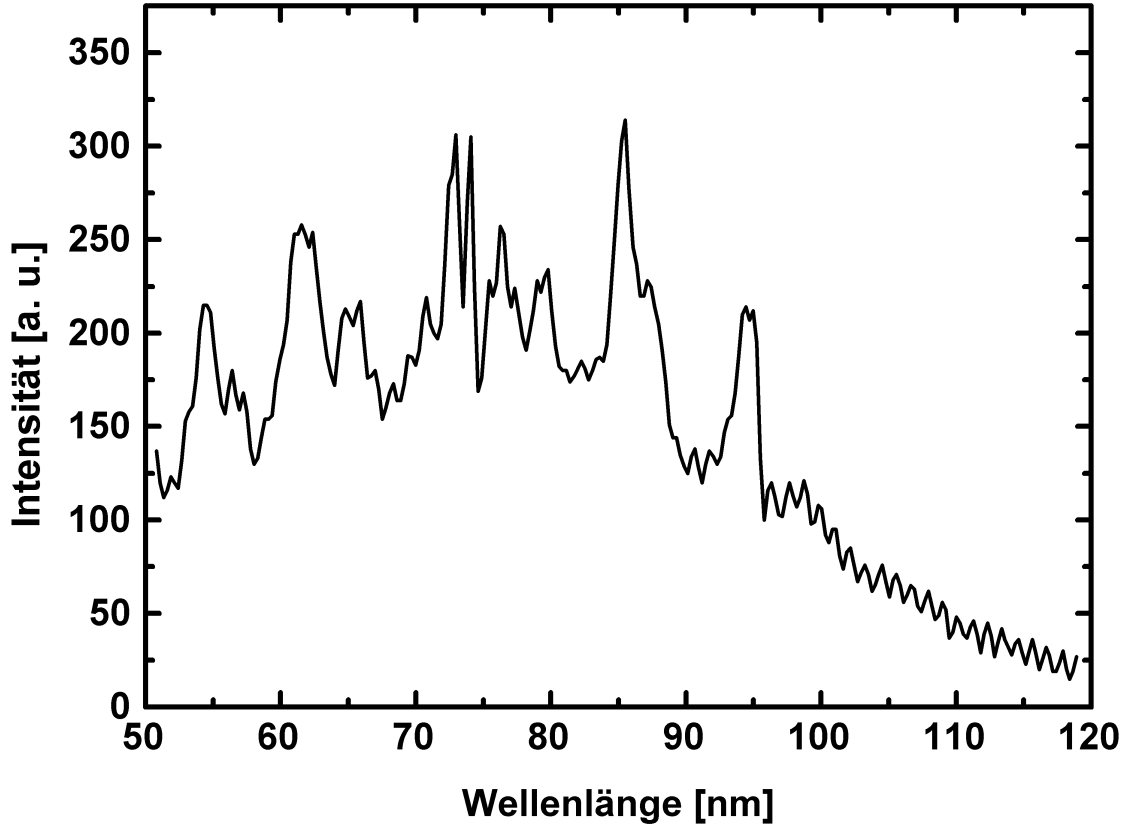


Abbildung 4.13: Spektrum der Harmonischen, Aluminium-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 70 mJ, Impulsdauer: 60 fs

fokussiert. Aufgrund der spektralen Bandbreite der fs-Lichtimpulse wurden achromatische Linsen mit den Brennweiten $f=60$ mm und $f=200$ mm eingesetzt. Die Durchmesser der Laserfoki lagen im Bereich von $d_{Fok} = 3 \dots 4 \mu\text{m}$ bei $f=60$ mm und bei $d_{Fok} = 8 \mu\text{m}$ bei $f=200$ mm. Für ein gaußförmiges Strahlprofil erhält man eine Spitzenintensität im Fokus von $1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ für einen Laserimpuls mit der Energie von 3 mJ und einer Impulsdauer von 100 fs. Bei einem Kontrastverhältnis der Intensität zum Impulsuntergrund von 4×10^8 ergeben sich maximale Intensitäten für den fokussierten Impulsuntergrund von 10^9 W/cm^2 . Die Intensität liegt noch unter der Ionisierungsgrenze für Festkörper und bildet somit kein Vorplasma aus. Deshalb kann bei den im folgenden vorgestellten Experimenten von quasi Untergrund freien fs-Laserimpulsen ausgegangen werden. Die Auswahl des Targetmaterials wird durch die verfügbare Kristalloptik stark eingeschränkt. Aus der Bragg-Gleichung $\lambda = 2d_{hkl} \sin \Theta$ geht hervor, dass die reflektierte Wellenlänge maximal den doppelten effektiven Netzebenenabstand des verwendeten Kristalls erreichen kann. Durch die experimentellen Begebenheiten wird der Reflexionswinkel auf den Bereich von ca. 30° bis 80° eingegrenzt. Betrachtet man die Röntgenemissionsspektren der Elemente, so eignen sich als Targetmaterial die Elemente niedriger Ordnungszahl. Die intensivsten Röntgenemissionslinien der Elemente Magnesium, Aluminium und Silizium liegen im Wellenlängenbereich von $6,65 \text{ \AA}$ für die Silizium He_α -Linie bis $9,89 \text{ \AA}$ für die Magnesium

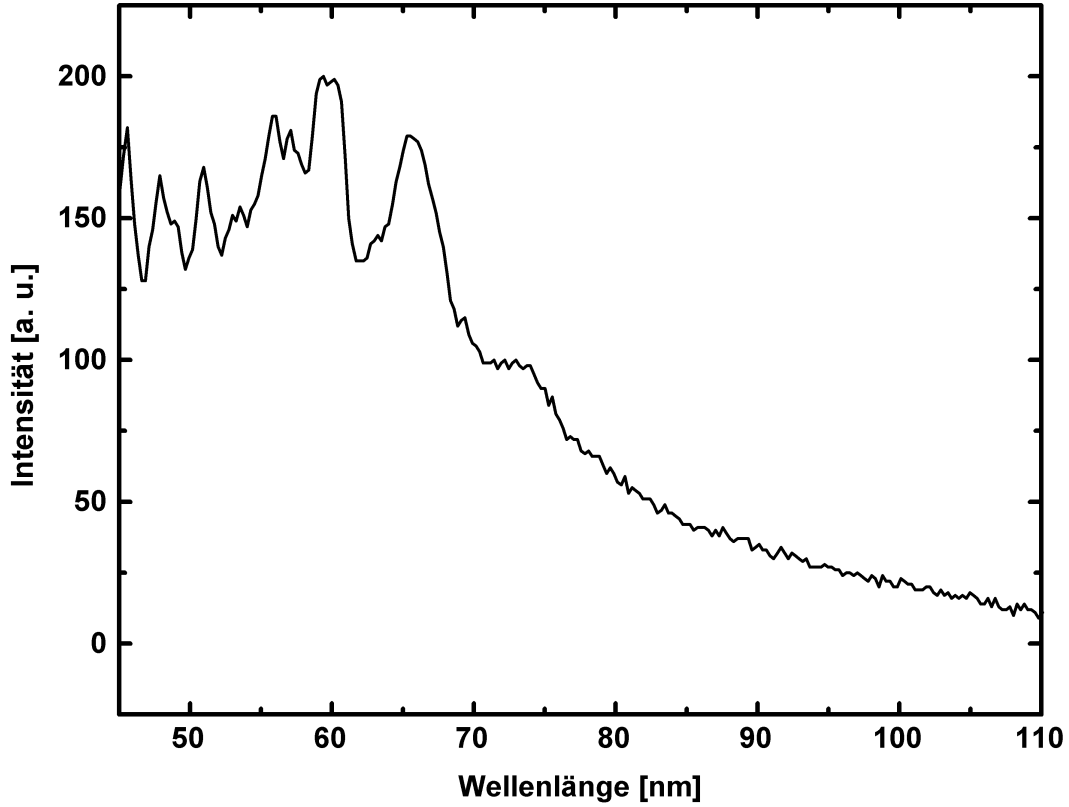


Abbildung 4.14: Spektrum, Glas-Target, Ti:Saphir-Laser Wellenlänge 800 nm, Impulsenergie: 100 mJ, Impulsdauer: 60 fs, s-polarisierter Impuls

K_α -Linie. Der effektive Gitterebenenabstand der Röntgenkristalle Quarz, Glimmer und PET (Pentaerythritol) deckt diesen Wellenlängenbereich gut ab. Die schweren Elemente emittieren ihre charakteristischen Emissionslinien bei deutlich kürzeren Wellenlängen. Ein weiterer wichtiger Punkt ist das Elastizitätsmodul des Kristalls. Ist das Substratmaterial zu spröde, eignet es sich nicht für die elastische Verformung. Für die Herstellung von gebogenen Kristallen eignen sich nur wenige Substrate. Für die Experimente standen gebogene Kristalle aus Quarz, Glimmer und PET zur Verfügung. Als Targetmaterial wurden deshalb Silizium und Aluminium gewählt, da die K_α - sowie die He_α -Linien für die Spektroskopie geeignet sind.

4.2.1 Emissionsspektren Aluminium und Silizium

Die Röntgenemissionsspektren wurden mit einem fokussierenden VON HAMOS Kristallspektrometer aufgenommen. Der zylindrisch gebogene PET Kristall hat einen Krümmungsradius $R_v = 100$ mm und einen Braggebenenabstand von $2d_{002} = 8,742$ Å. Das Spektrometer erlaubte es die K-Schalenspektren von Aluminium und Silizium im Wellenlängenbereich von $5,6$ Å (Si He_β) bis zu $8,4$ Å (Al K_α) zu untersuchen. Das entspricht dem Energiebereich von $1,4$ keV bis $2,3$ keV. Die als Detektor verwendeten Röntgenfilme

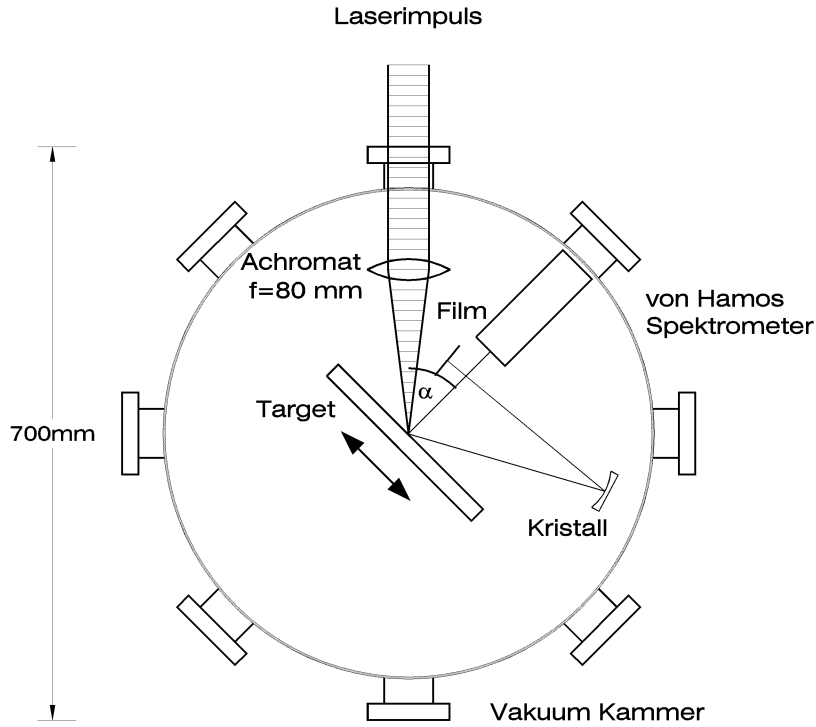


Abbildung 4.15: Experimenteller Aufbau zur Messung der Röntgenemission aus Ultrakurzzeit Laserplasmen.

Kodak DEF und Kodak SB wurden absolut kalibriert [85][86], sodaß eine quantitative Bestimmung der Photonenausbeute möglich war [16].

Abbildung 4.16 zeigt ein Aluminium Röntgenspektrum. Die Energie der p-polarisierten Laserimpulse betrug 2,1 mJ bei einer Impulsdauer von 100 fs. Für eine Aufnahme eines Spektrums waren 3000 Laserimpulse erforderlich, was einer Meßzeit von 5 min entspricht. Das Spektrum zeigt die typische Linienemission mit intensiven K_α - und He_α -Linien des Siliziums, wobei eine vergleichbare Intensität der Linien auftritt. Zwischen den beiden intensiven Linien finden sich weitere Spektrallinien. Den Linien konnten Übergänge von schwächer ionisiertem Aluminium zugeordnet werden. Weiterhin konnte die K_β -Linie und die Satellitenlinien j,k von heliumähnlichen Ionen vermessen werden. Für die Kalibrierung wurden die Tabellenwerte der K_α und der He_α -Linien verwandt [87]. In Tabelle 4.2.1 sind die gemessenen und die tabellarischen Spektrallinien zusammengefaßt.

Röntgenlinie	gemessene Wellenlänge [nm]	Literaturwert [Å]
Al K_α	*	8,34
Al He_α	*	7,7756
Al K_β	7,96	7,960
j,k- Satellit	7,87	7,8712/7,8753

Bei s-polarisierter Laserstrahlung ist bei gleichen experimentellen Bedingungen die Intensität der He_α -Linie deutlich geringer. Aufgrund des hohen Ionisationsgrades des Laserplasmas ist eine geringere Intensität der K_α -Strahlung gegenüber der He_α -Strahlung zu

erwarten. In Plasmen, die mit ps-Laserimpulsen erzeugt worden sind, war eine deutlich schwächere K_α -Linie aufgetreten. Diese Experimente wurden mit dem gleichen Spektrometer durchgeführt [68]. Um auszuschließen, daß das Spektrometer in diesem Wellenlängenbereich stark unterschiedliche Reflektivitäten aufweist, wurden Messungen am Berliner Elektronenspeicherring für Synchrotronstrahlung (BESSY) mit genau vermessenen Strahlintensitäten durchgeführt [70]. Der im Spektrometer verwendete Glimmerkristall enthält Aluminium. Dadurch besteht die Möglichkeit, daß der Kristall bei der Wellenlänge der K_α -Strahlung eine Absorptionskante besitzt, wodurch bei der K_α -Linie eine geringere Abschwächung als bei der He_α -Linie auftreten kann. Die Messungen ergaben aber nur eine um den Faktor 1,3 höhere Reflektivität. Somit ist die reale Intensität der K_α -Linie höher als die der He_α -Linie.

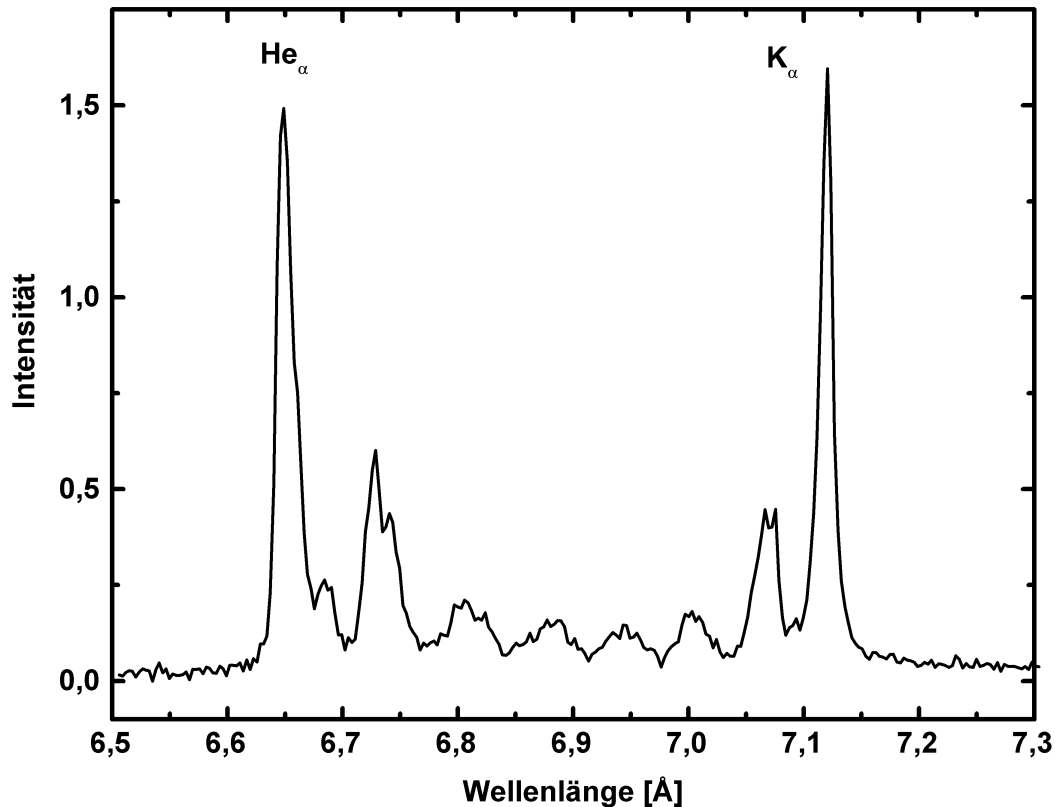


Abbildung 4.16: Röntgenspektrum Silizium-Target poliert, CPM-Farbstofflaser Wellenlänge: 620 nm, Impulsenergie: 2,1 mJ, Impulsdauer: 100 fs, Polarisation: p-pol. 3000 Impulse

Die Röntgenspektren des Aluminiums in Abbildung 4.18 zeigten ebenfalls intensive K_α - und He_α -Linienemissionen. Die Intensität liegt etwa um den Faktor 3 über der des Siliziums. Als Targetmaterial wurde poliertes Aluminium verwendet.

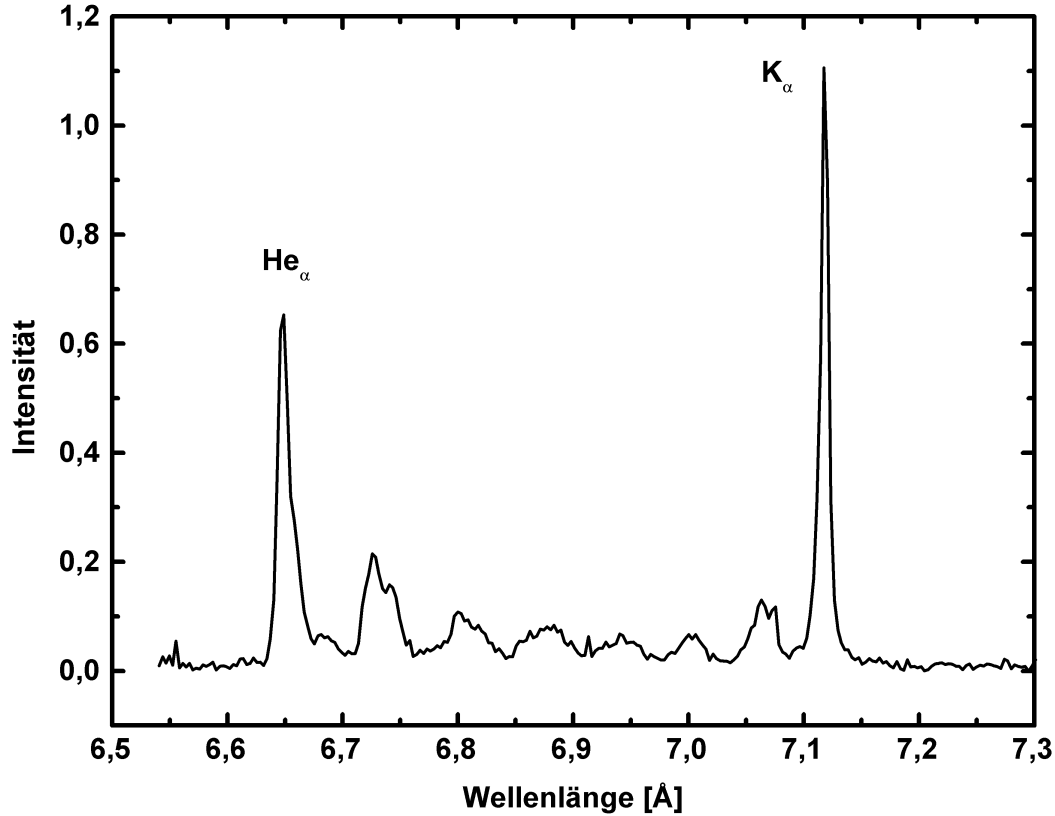


Abbildung 4.17: Röntgenspektrum Silizium-Target poliert, CPM-Farbstofflaser Wellenlänge: 620 nm, Impulsenergie: 2,1 mJ, Impulsdauer: 100 fs, Polarisation: s-pol. 3000 Impulse

4.2.2 Einfluß der Targetoberfläche

Bei aufgerauhtem Target zeigt das Spektrum 4.19 deutliche Unterschiede bei der Intensität der He_α -Linie im Vergleich zum polierten Aluminiumtarget. Durch die rauhe Oberflächenbeschaffenheit des Targetmaterials wird die Energieeinkopplung verbessert. Die Aluminium He_α -Linie wird durch 11-fach ionisiertes Aluminium emittiert, wogegen die Aluminium K_α -Linie aus dem „kalten“ Festkörpermateriale abgestrahlt wird. Bei einem rauhen Target wird das Mikroplasma stärker aufgeheizt und die Al He_α -Linie wird intensiver. Die K_α -Strahlung wird durch schnelle Elektronen erzeugt, die in das Festkörpermateriale eindringen [88].

Der Einfluß der Oberflächenbeschaffenheit wurde von MURNANE ET AL- [89] untersucht. In den Experimenten wurden eine poröse Goldoberfläche sowie periodische Gitterstrukturen bestrahlt. Die Anzahl der emittierten Röntgenphotonen lag über zwei Größenordnungen höher als bei der Verwendung von ebenem Targetmaterial.

Die verwendeten Filme Kodak SB und Kodak DEF zeigen alle eine diffuse Untergrundschwärzung. Als Ursache hierfür kommt die Bremsstrahlung und die elektroneninduzierte Fluoreszenzstrahlung in Betracht. Ein Teil der Untergrundschwärzung konnte durch ei-

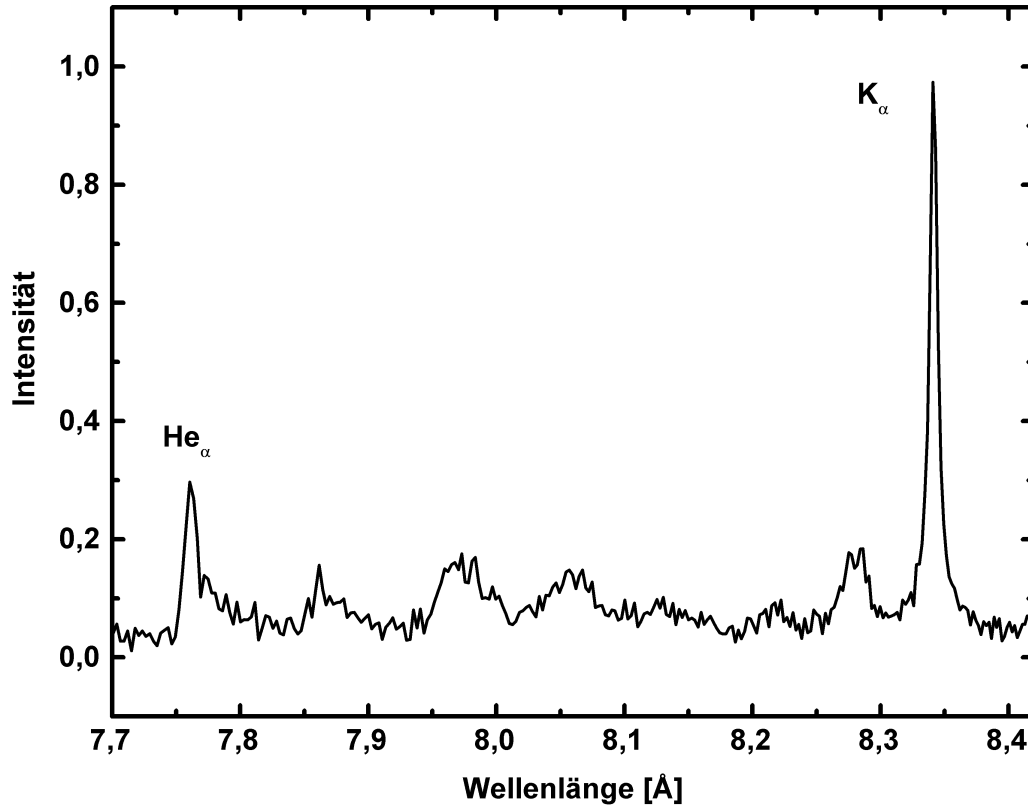


Abbildung 4.18: Röntgenspektrum Aluminium-Target poliert, CPM-Farbstofflaser Wellenlänge: 620 nm, Impulsenergie: 3 mJ, Impulsdauer: 100 fs, Polarisation: p-pol. 1000 Impulse

ne Restatmosphäre von ca. 30 Torr in der Experimentierkammer unterdrückt werden. Dies ist ein Indiz für die schnellen Elektronen, die im Restgas abgebremst wurden und in den Lichtfilterfolien des Spektrometers keine Röntgenfluoreszenzstrahlung erzeugten. Eine weitere Reduktion des Untergrundsignals wurde durch 10 μm dicke Filterfolien aus Polyethylen vor dem Spektrometer und den Filmkassetten erreicht. Die in den Folien angeregte Fluoreszenz liegt im langwelligeren Röntgenbereich und kann die folgenden Lichtfolien aus Berillium nicht durchdringen. Durch diese Maßnahmen konnte das Untergrundsignal stark abgeschwächt werden. Eine vollständige Eliminierung war aber nicht möglich. Als weitere Ursache kommt kurzwellige Strahlung ($\lambda < 0,3\text{nm}$) in Betracht, die durch die Filterfolien fast ungehindert transmittiert wird. Das Vorhandensein kurzwelliger Strahlung zeigen auch die Messungen bei denen die fokussierenden Kristalle eingesetzt wurden.

Bei dem Experiment zur Messung der spektral integrierten Röntgenausbeute wurde ein Röntgenfilm direkt der Röntgenstrahlung des Plasmas ausgesetzt. Vor dem Film befanden sich als Lichtschutz zwei Filterfolien, bestehend aus 6 μm Mylarfolie mit einer 0,2 μm dicken Aluminiumschicht und ein Stufenfilter aus dem gleichen Material, bestehend aus 5 Filterfolien. Das Stufenfilter erlaubte im Energiebereich von ca. 1 keV bis 4 keV, was

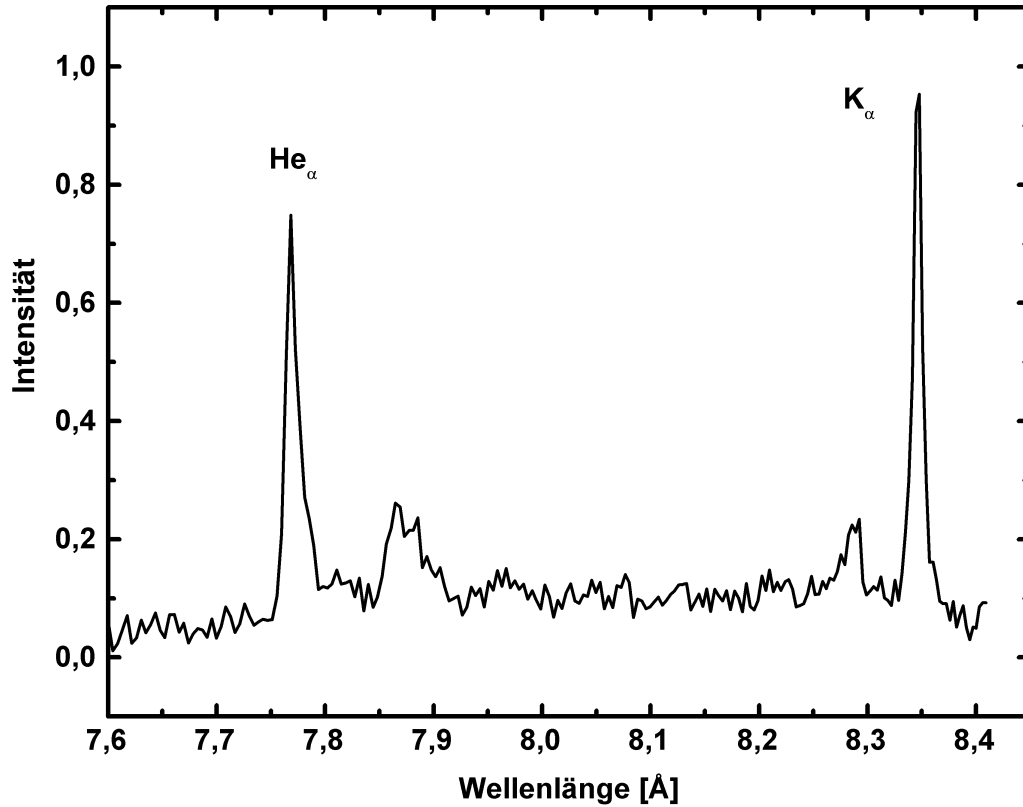


Abbildung 4.19: Röntgenspektrum Aluminium-Target rauh, CPM-Farbstofflaser Wellenlänge: 620 nm, Impulsenergie: 3 mJ, Impulsdauer: 100 fs, Polarisation: p-pol. 1000 Impulse

einem Wellenlängenbereich von 3 Å bis 10 Å entspricht, eine grobe Abschätzung der spektralen Verteilung der Röntgenemission. In Abbildung 4.20 ist die integrale Anzahl der Röntgenphotonen in Abhängigkeit von dem Targetmaterial und der verwendeten Filterfolien dargestellt. Bei den nicht polierten Targetmaterialien (rauhes Aluminium und Magnesium), sowie bei den Laserimpulsen mit erhöhtem Impulsuntergrund (ASE) wird die Strahlung durch die Filterfolien nicht geschwächt. Der Sachverhalt deutet auf Röntgenstrahlung im Energiebereich oberhalb von 4 keV hin, die fast ungeschwächt die Filter durchdringen kann. Wie auch schon bei den Aluminiumspektren deutlich wurde, ist die Photonenausbeute für rauhes Targetmaterial deutlich höher. Für aufgerauhtes Aluminium ist die Anzahl der Photonen pro Flächenelement um ca. eine Größenordnung höher als für poliertes Aluminium. Für polierte Targetmaterialien und für Laserimpulse mit Untergrundstrahlung ist eine Abschwächung durch die Filter ersichtlich. Der Anstieg der Geraden ist ein Maß für die Absorption im Filtermaterial. Die Photonenausbeute für Silizium ist geringer als für Aluminium. Silizium besitzt aber höhere Photonenenergien, erkennbar an der geringeren Steigung der Geraden. Eine um den Faktor 3,7 verringerte Laserenergie verringert die Röntgenphotonenausbeute etwa um eine Größenordnung.

Wie die Spektren zeigen, eignen sich beide K-Schalen Röntgenemissionslinien gleicher-

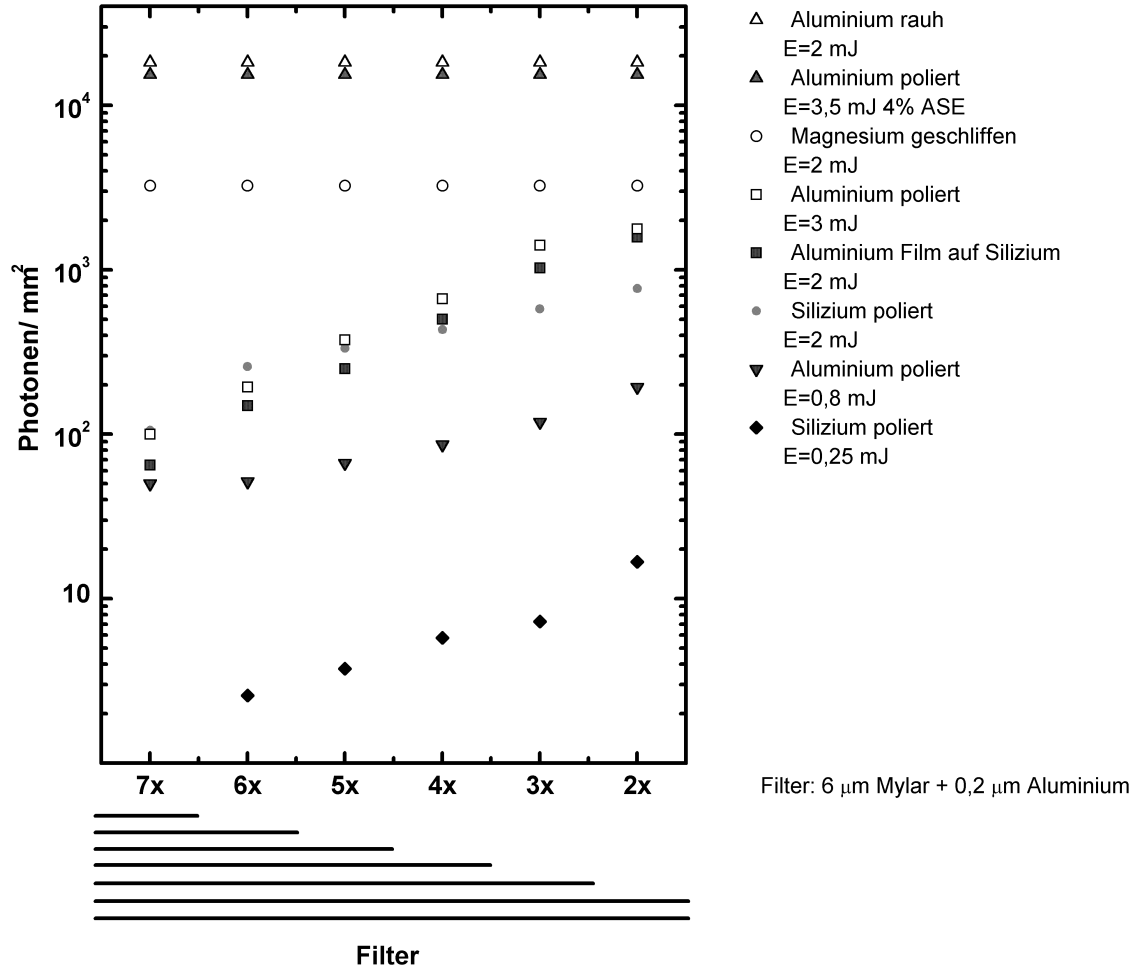


Abbildung 4.20: Anzahl der Röntgenphotonen pro Laserimpuls und Fläche in Abhängigkeit von der Anzahl der Filter. Targetmaterialien: Aluminium, Silizium, Magnesium; Oberflächenbearbeitung: rau (sandgestrahlt), geschliffen, poliert; Abstand Plasma-Film: 100 mm; Filterfolien: 6 µm Mylar + 0,2 µm Aluminium; CPM-Farbstofflaser, Wellenlänge: 620 nm, Impulsdauer: 100 fs

maßen als fs-Röntgenquelle. Für eine Nutzung als Röntgenquelle ist eine hohe Lichtstärke erforderlich. Die Absolutmessungen der Röntgenemission zeigen, daß sich durch die Wahl des Targetmaterials und der Targetbeschaffenheit die Anzahl der Röntgenphotonen pro Flächenelement um zwei Größenordnungen steigern lassen. Neben der Lichtstärke der Quelle ist die Ausdehnung sowie die Röntgenimpulsdauer für die Anwendungen von Bedeutung. Die Strahlung wird in den vollen Halbraum vor dem Target emittiert, was eine Fokussierung notwendig macht. Im Röntgenspektralbereich kommt dafür nur Kristalloptik in Betracht. In dem folgenden Kapitel wird die Fokussierbarkeit der ultrakurzen Röntgenimpulse mit gebogenen Kristallen untersucht.

4.2.3 Kristalloptische Fokussierung der Röntgenstrahlung

Die Auswahl der verwendeten Kristallspiegel wird durch folgende Kriterien begrenzt:

- Der Gitterebenenabstand des Kristall muß im Bereich der Wellenlänge der Röntgenstrahlung liegen. Aufgrund der Bragg-Bedingungen können nur Kristalle verwendet werden, deren $2d$ kleiner oder gleich der Röntgenwellenlänge ist. Der resultierende Bragg-Winkel sollte aber im Bereich $30\text{-}80^\circ$ liegen um für die Experimente praktikable Bedingungen zu schaffen.
- Der Kristall muß eine hohe Elastizität aufweisen um ihn in die gewünschte Form biegen zu können.
- Die integrale Reflektivität sollte einen hohen Wert aufweisen.
- Die spektrale Breite der Reflektivitätskurve muß groß sein.

In Abbildung 4.21 ist der experimentelle Aufbau schematisch dargestellt. Für die Fokussierung der Röntgenemission wurden zweidimensional gebogene Röntgenkristalle verwendet und eine Punkt zu Punkt Fokussierung der Strahlung realisiert [90].

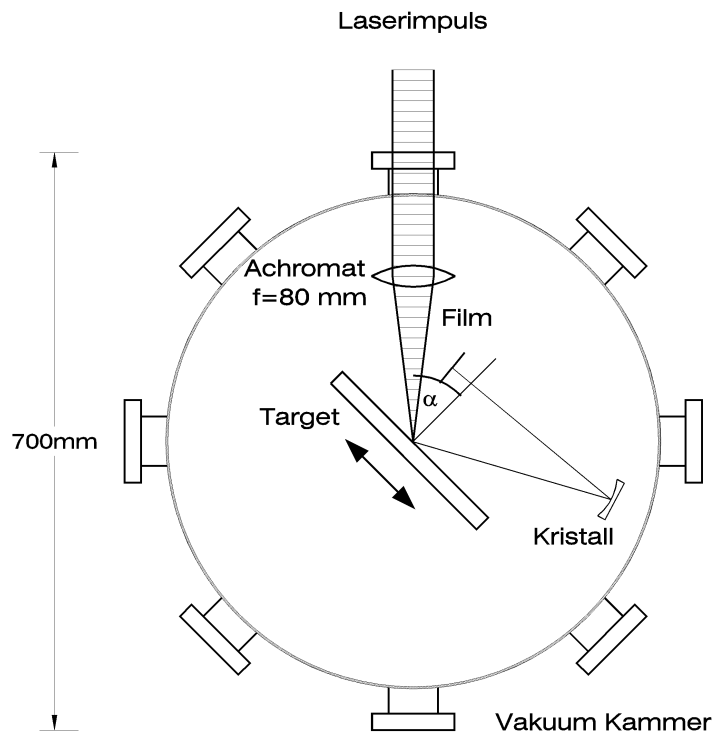


Abbildung 4.21: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Fokussierung der Röntgenstrahlung aus Ultrakurzzeit Laserplasmen.

Die Al-He $_{\alpha}$ -Linienemission wurde mit einem torischen gebogenen Quarz-Kristall ($2d_{100} = 8,5098$) abgebildet. Bei dem Kristall sind die beiden Krümmungsradien R_v und R_h exakt

auf den Bragg-Reflexionswinkel Θ abgestimmt, sodaß ein stigmatiches Bild des Emissionsgebiets erzeugt werden konnte. Eine Auswertung der Schwärzungsverteilung auf dem Kodak SB-Röntgenfilm ergab mit der Kalibrierung von HENKE ET AL- [91] die Photonendichteverteilung auf dem Film. Die experimentell ermittelte Anzahl der Photonen lag in dem Bereich 200 bis 400 Photonen/Impuls. Die laterale Ausdehnung des Quellgebiets der Al-He $_{\alpha}$ -Linie konnte auf $\approx 100\mu\text{m}$ bestimmt werden und liegt damit in der Größenordnung des Fokaldurchmessers des anregenden Laserlichts.

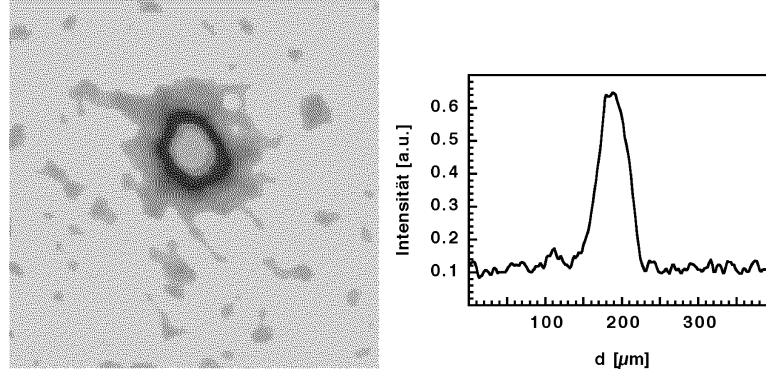


Abbildung 4.22: Röntgenfokus Aluminium-He $_{\alpha}$ -Linie, CPM-Farbstofflaser Wellenlänge: 620 nm, Impulsenergie: 3,5 mJ, Impulsdauer: 100 fs

Der sphärisch gebogene Quarz-Kristall, der für die Abbildung des Röntgenemissionsgebiets der Aluminium K_{α} -Linie verwendet wurde, erlaubt keine stigmatiches Abbildung. Der Röntgenfokus wurde deshalb bei verschiedenen Entfernungen Kristall-Detektor bestimmt. Für Bragg-Winkel $\leq 90^{\circ}$ existieren zwei Fokalpositionen. In Abbildung 4.23 ist eine Aufnahme der Röntgenemission eines fs-Laserplasmas mit einem sphärischen Quarzkristall dargestellt. Die berechneten Geometrien der Abbildung zeigen den Verlauf der astigmatischen Abbildung entlang der Bildachse. Die beiden Linienfoki in horizontaler sowie vertikaler Richtung haben eine minimale Breite von $80\mu\text{m}$. Die Anzahl der reflektierten Röntgenphotonen erreichte Werte von 4000 bis 5000 Photonen/Impuls. Die experimentellen Resultate liegen in guter Übereinstimmung mit den berechneten Werten für die verwendeten Kristalle. In Tabelle 4.2.3 sind die Ergebnisse der Röntgenfokussierung zusammengefaßt. Für die Berechnung der theoretischen Werte wurde von einer Quellstärke des Röntgenemissionsgebiets von 10^7 Photonen/sr Impuls ausgegangen.

Kristall	Röntgenlinie	$\Delta\lambda = \lambda$	Phot. /Impuls theo.	Phot. /Impuls exp.
Quarz(100)	Al K_{α}	6,6...6,7 mÅ	1800...2600	2030
Quarz(100)	Al K_{α}	6,6...6,7 mÅ	1800...2600	3090
Quarz(100)	Al He $_{\alpha}$	7,6 mÅ	328	247
Quarz(100)	Al He $_{\alpha}$	10,4 mÅ	422	364

Tabelle 4.1: Photonenausbeute der Reflexion an ausgewählten Kristallen bei der Al K_{α} - und der Al He $_{\alpha}$ -Fokussierung [69]

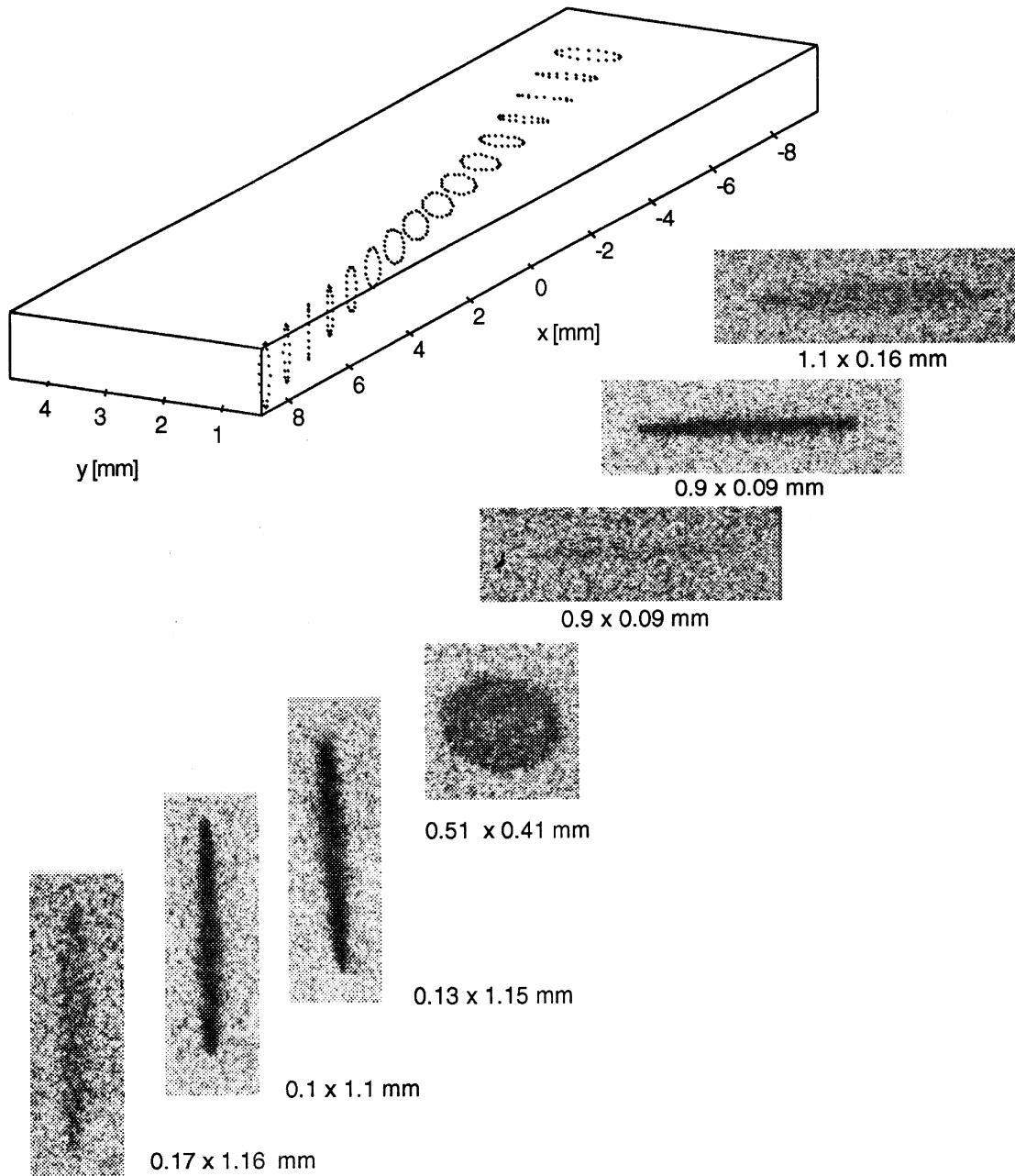


Abbildung 4.23: a) Berechnete Bildgeometrie für eine Kugel. Einfallswinkel: $78,4^\circ$. Es ergeben sich zwei Fokalpositionen bei $f_H=148,58$ mm und $f_V=161,74$ mm
 b) Abbildung eines Röntgenfokus mit einem sphärisch gebogenen Quarz (101) Kristall. Radius: $R=151,7$ mm; Braggwinkel für die Al- K_α Linie: $\Theta=78,4^\circ$

5. Diskussion und Ausblick

5.1 Anwendung ultrakurzer Röntgenimpulse

Das Spektrum der ultrakurzen Röntgenstrahlung überdeckt einen extrem weiten Energiebereich von 100 eV bis zu einigen MeV. Bei den konventionellen Röntgenquellen ist ein derart breites Spektrum nur mit Beschleunigern zu erreichen, jedoch ist hier die Impulslänge deutlich länger. Die Mikroplasmen eignen sich als Laborquelle für Anwendungen im VUV-Bereich über den weichen Röntgenbereich bis hin zur harten Röntgenstrahlung. In der Literatur sind bereits einige Anwendungen für die ultrakurzen Röntgenimpulse vorgestellt worden. Ein mögliches Einsatzgebiet findet sich in der medizinischen Radiologie. Mit einem Laserimpuls der Intensität von 10^{18} W/cm^2 können Röntgenausbeuten erzeugt werden die ausreichen um herkömmliche Bildspeicherplatten zu belichten. Erste Röntgenaufnahmen zeigen ein Drahtgitter mit einer Maschenweite von $250 \mu\text{m}$ und ein menschliches Ambosknöchelchen des Ohrs [92]. Die punktförmige Quelle erlaubt vergrößernde Aufnahmen mit hohem räumlichen Auflösungsvermögen. Die hohe Auflösung in Verbindung mit der ultrakurzen Belichtungszeit erlauben stroboskopische Aufnahmen von dynamischen Prozessen. In situ Beobachtungen von lebenden Zellen sind mit bisher unerreichter Zeitauflösung möglich.

Weitere Anwendungen finden sich in der Strukturuntersuchung. Die Röntgenbeugung ist eine gebräuchlich Methode zur Untersuchung von Materialstrukturen. Die Untersuchung schneller chemischer Prozesse und Phasenübergänge erfordert ultrakurze Röntgenquellen. Moderne Synchrotrons sind in der Lage intensive polychromatische Röntgenstrahlung mit einer Impulsdauer von ca. 50 ps zu liefern. Die Röntgenimpulse aus Mikroplasmen eröffnen erstmals die Möglichkeit mit sub-Pikosekunden Impulsen Röntgendiffraktionsmessungen in der Zeitskala atomarer Bewegungen durchzuführen. In einem ersten Experiment wurde die Änderung im Röntgenbeugungsbild eines lasergeheizten Langmuir-Blodgett Film mit sub-Pikosekunden Zeitauflösung demonstriert [18]. Das Experiment wurde mit einem Laser durchgeführt, der Laserimpulse von 130 fs Zeitdauer, 800 nm Wellenlänge und einer Repetitionsrate von 10 Hz lieferte. Der Strahl wurde vor der Vakuumkammer in zwei Strahlen aufgeteilt. Dem ersten Strahl wurde ein zweiter Impuls mit einer Impulsdauer von 9 ps überlagert. Beide Impulse wurden auf ein Silizium Target fokussiert. Durch den über ein optisches Gittersystem erzeugten Vorpuls wurde ein Plasma erzeugt, in das dann der fs-Impuls einkoppelte. Hierdurch konnte die Röntgenausbeute um den Faktor 7 gesteigert werden. Die emittierten Silizium K_α -Photonen wurden mit einem torischen Quarzkristall auf den Langmuir-Blodgett Film fokussiert. Im Röntgenfokus konnten 5×10^4 Photonen detektiert werden. Der zweite Strahl wurde direkt auf den Film fokussiert um den Film aufzuheizen. Die Ergebnisse zeigen mit sub-Pikosekunden Zeitauflösung einen Abfall der gestreuten Röntgenintensität bedingt durch die Zerstörung des atomaren Gitters im Langmuir-Blodgett Film.

Eine weitere Anwendung ergibt sich aus der Bestrahlung von schweren Metallen mit intensiven fs-Laserimpulsen mit Spitzenintensitäten von 10^{18} W/cm^2 . Das Röntgenemissionsspektrum erstreckte sich bis zu Energien in den MeV-Bereich. Für die Erzeugung

derart hoher Photonenenergien kommt die Wechselwirkung relativistischer Elektronen mit Materie in Betracht. Abschätzungen ergeben, dass ca. 0,3 der Energie größer 20 keV umgewandelt wird. Genauere Untersuchungen stehen noch aus.

5.2 Perspektiven der Anwendung ultrakurzer VUV- und Röntgenquellen

Die Röntgenimpulse bieten bei einer Impulsdauer von ca. 100 fs und einem Energiebereich von 100 eV bis 1 MeV die Möglichkeit Röntgenspektroskopie mit hoher Zeitauflösung durchzuführen. Es sind bereits Konzepte für die Ultraviolett-Photoelektronen-Spektroskopie (UPS) und die Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie (XPS) entwickelt worden.

Bei den zeitaufgelösten XPS-Experimenten wird mit einem "Probe"-Laserimpuls auf einer Probe eine Reaktion angeregt. Mit einem zweiten zeitverzögerten "Pump"-Laserimpuls wird in einer separaten Vakuumkammer auf einem Festkörpertarget ein Röntgenimpuls generiert. Die Röntgenstrahlung wird über einen Röntgenspiegel (Kristall) auf die Probe abgebildet. Der Röntgenspiegel übernimmt hier zwei Aufgaben: 1. die Röntgenphotonenzahl auf der Probe zu erhöhen und 2. die vakuumseitige Trennung zwischen Diagnosekammer und Plasmakammer. Dies ist notwendig da für Diagnostiken wie z. B. einem Elektronenspektrometer oder Mikro-Kanal-Platten Ultrahochvakuum Bedingungen notwendig sind. In der Plasmakammer erreicht man aber bedingt durch die Ablation des Targetmaterials nur Hochvakuum Bedingungen.

Für die zeitaufgelösten UPS-Experimente muß in der Apparatur nur das Festkörpertarget durch ein Gasstrahl ersetzt werden. Der "Probe"-Laserimpuls generiert in dem Edelgas höhere Harmonische die dann mit einem Multilayer Spiegel auf die Probe abgebildet werden. Der "Probe"-Laserimpuls wird direkt auf die Probe fokussiert. Wie in dem XPS-Experiment muß auch hier eine Trennung zwischen Diagnostikkammer und Gasstrahl erfolgen.

Als besonderer Aspekt sei auf die dispersiven Eigenschaften der Röntgen- wie auch Multilayerspiegel hingewiesen. Wie im Kapitel 3 erläutert wurde ist das spektrale Fenster der Röntgenkristalle extrem schmal. Mit einem Röntgenspiegel kann quasi monochromatische Röntgenstrahlung erzeugt werden. Stimmt man Target- und Spiegelmaterial aufeinander ab, so kann über den Braggwinkel in gewissen Bereichen die Röntgenwellenlänge selektiert werden. Der Multilayerspiegel bietet ebenfalls die Möglichkeit der Wellenlängenselektion, wenn auch nicht in einen so schmalen spektralen Bereich. Hier existieren aber bedingt durch den Fertigungsprozeß mehr Freiheitsgrade für die Anpassung. Bei den Röntgenkristallen ist man durch die natürlichen Gitterebenenabstände und Elastizitätsmodule des Kristalls stark eingeschränkt.

Ein interessanter Aspekt ist der Einsatz der Strahlquelle im sogenannten Wasserfenster (2,3 nm-2,8 nm). Durch die geringe Absorption der Strahlung in Wasser, die 1/e-Länge beträgt hier bis zu 10 mm, lassen sich lebende Zellen in wässriger Lösung beobachten. Die durch die fs-Röntgenimpulse gegebene extrem hohe Zeitauflösung ermöglicht es sehr schnelle Prozesse zu beobachten.

Als letzte Anwendung sei der Röntgenlaser erwähnt. In der aktuellen Forschung werden verschiedene Entwicklungskonzepte für den Röntgenlaser erprobt, die jedoch alle sehr hohe Laserleistungen erfordern. Die Entwicklung ist nur in einigen wenigen Laser-Großanlagen unter sehr hohen Kosten möglich. Es existieren bereits Konzepte eines Röntgenlasers mit einer Femtosekunden-Laseranlage als Pumpquelle zu realisieren.

5.3 Anwendung der höheren Harmonischen

Höhere Harmonische wurden bereits für zeitaufgelöste Messungen der Elektronendichte in Femtosekunden-Laserplasmen eingesetzt [93]. Bei dem Experiment wurde die unterschiedliche Absorption der Harmonischen in einem Laser generierten Plasma ausgenutzt um die Dichte der freien Elektronen oberhalb der kritischen Dichte der fundamentalen Wellenlänge zu bestimmen. Die höheren Harmonischen wurden mit 100 fs Impulsen eines Titan-Saphir Lasers in einem Edelgasstrahl generiert. Das Plasma wurde mit dem gleichen Impuls in einer dünnen Polykarbonat Folie erzeugt. Mittels der Anrege-Abfrage Technik konnte die zeitliche Überlappung zwischen Plasmaerzeugung und Harmonischen variiert werden. Die Intensität der Harmonischen wurde in Transmission durch die Plasmaschicht gemessen. Harmonische, deren Wellenlängen unterhalb der Plasmafrequenz liegen, werden reflektiert, wogegen die kürzeren Wellenlängen die Schicht durchdringen. Die Messung ergab Elektronendichten von $4 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ beim zeitlichen Nullpunkt. Die Elektronendichte verringerte sich innerhalb von 4 ps auf $1 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$. Mit Hilfe der Höheren Harmonischen lassen sich extrem hohe Elektronendichten in Plasmen direkt vermessen. Bei einer Wellenlänge von 10 nm beträgt die kritische Plasmadichte 10^{25} cm^{-3} und liegt um den Faktor 1000 oberhalb der Festkörperdichte für ein hydrogenes Plasma. Höhere Harmonische sind aufgrund ihrer kurzen Wellenlänge ideal für die Analyse von extrem dichten Plasmen, wie sie z. B. in Fusionsplasmen und Experimenten zum Röntgenlaser auftreten, geeignet.

5.4 Weiterführende Experimente

Wie Berechnungen von LICHTERS ET AL- zeigen, sollte für eine effektive Erzeugung von Höheren Harmonischen ein Plasmagradiant vorteilhaft sein. Die experimentelle Realisation läßt sich mit einem "Anrege-Abfrage" Aufbau durchführen. Hierbei wird der fs-Impuls in zwei Impulse geteilt und ein Impuls über eine Laufstrecke zeitlich zum ersten Impuls verzögert. Durch die Variation von Energie und Verzögerungszeit läßt sich ein Plasmagradiant an der Festkörperoberfläche einstellen und die Intensität der Harmonischen maximieren. Der Versuchsaufbau erfordert hohen Justageaufwand, da nicht nur die zeitliche und räumliche Überlappung der beiden Laserimpulse sehr genau eingestellt werden muß, sondern ebenfalls die Diagnostik zur Detektion der Harmonischen. Der zeitliche Intensitätsverlauf des anregenden Laserimpulses muß sehr steil sein um kein Vorplasma durch den Impulsuntergrund zu generieren. Dies stellt hohe Anforderungen an die Laseranlage insbesondere an den Impulsstrecker und den Impulskompressor. Das Experiment ist bereits in der Arbeitsgruppe durchgeführt worden. Die Ergebnisse weichen

aber von den Berechnungen stark ab. Die Intensitäten der Harmonischen nahmen durch den Vorpuls stark ab.

Messungen zur Kohärenz der Harmonischen niedriger Ordnung sind bereits durchgeführt worden. Die räumlichen Kohärenz wurde über ein Youngsches Doppelspalt Experiment [8] nachgewiesen. Mit einem frequenzverdoppelten Nd:Glas-Laser mit der Impulsdauer von 2 ps und der Energie von 0,5 J wurden Harmonische in einem Heliumgas Strahl erzeugt. Die Harmonischen in dem Wellenlängenbereich von 2,7 nm bis 4,8 nm zeigen hohe räumliche Kohärenz. Bei höheren Laserenergien verschlechterten sich die Kohärenzeigenschaften durch die Erzeugung von freien Elektronen bedingt durch die Ionisation der Gasatome im optischen Feld. Die zeitliche Kohärenz wurde ebenfalls an einem Nd:Glas-Lasersystem gemessen [79]. Die 35 ps Laserimpulse wurden in zwei Strahlen geteilt und in einen Abstand von 200 μm in einen Xenon Gasstrahl fokussiert. Die Harmonischen sind somit räumlich voneinander getrennt und beeinflussen sich damit nicht. Die Harmonischen wurden über ein sphärisches Gitter auf eine Micro-Cannel-Plate verstärkt und auf eine CCD-Kamera abgebildet. Das Prinzip dieser Anordnung ist vergleichbar dem Youngschen Doppelspaltexperiment, mit dem Unterschied, das durch die räumliche Trennung der zwei Quellen das auf den Spalt einfallende Licht nicht von der selben ebenen Welle herrührt. Die beiden erzeugenden Wellen im Gasstrahl haben - bedingt durch ihre Erzeugung - die gleiche Phase. Dies läßt sich nicht notwendigerweise auf die Harmonischen übertragen, da die Phasen der Dipole der einzelnen Heliumatome verschieden sind. Das Interferenzbild im Fernfeld zeigt klare Interferenzringe für die 13. Harmonische, was einer Wellenlänge von 81,4 nm entspricht. Das Interferenzbild ist bis zu einer Verschiebung der Intensitäten im Pumplichtfokus um den Faktor zwei stabil, d. h. die Harmonischen werden über einen weiten Pumpenergiebereich kohärent abgestrahlt.

Der zeitliche Impulsverlauf ist ein entscheidender Faktor für die effiziente Erzeugung von Harmonischen. Experimente mit steilen Impulsflanken zeigen eine deutlich höhere Intensität in den Harmonischen. Bei den Versuchen wurden gaußförmige 25 fs Impulse in einem doppelbrechenden Medium auf eine Impulsdauer von 21 fs verkürzt. Die Anstiegsflanke konnte auf 12 fs reduziert werden [94]. Als Nachteile der Methode sind die um 25 % geringere Spitzenintensität und eine Vorpuls von 10 % Intensität des Ausgangsimpulses zu nennen.

5.5 Entwicklungspotential

Wie die Experimente zeigen, ist für die Erzeugung von Harmonischen hoher Ordnung ein fs-Impuls mit extrem gutem Kontrastverhältnis erforderlich. In den Experimenten konnte nachgewiesen werden, daß bei verringertem Kontrastverhältnis zwischen Impulsuntergrund und Hauptimpuls die maximale Ordnung der Harmonischen abnahm. Die technische Realisation der Impulse ist aber schwierig, da bereits geringe Abweichungen in der Positioniergenauigkeit im Lasersystem zu einem deutlichen Vorimpuls führen. Insbesondere ist die exakte Justage der optischen Gitter zur Impulsverlängerung sowie zur anschließenden Impulskomprimierung extrem wichtig. Die Effizienz und die Güte der durch die CPA-Technik erzeugten ultrakurzen Impulse ist durch mehrere Faktoren

limitiert. Zum einen müssen die Phasenstörungen höhere Ordnungen in den dispersiven optischen Elementen, insbesondere im Impulsstrecker und -kompressor kompensiert werden, zum andern beeinflusst das endliche Verstärkungs-Bandbreiteprodukt in den Verstärkerstufen die Impulsqualität. Durch ein spezielles Design der Impulsstrecker und -kompressor Stufen, wie z. B. die Verwendung von ausschließlich reflektiver Optik und korrigierter Oberflächenformen lassen sich die Phasenstörungen 5. Ordnung kompensieren [95]. Mit diesen Lasersystemen lassen sich Laserimpulse mit einer Energie von bis zu 2 J und einer Impulsdauer von 10 fs realisieren. Die Lasersysteme stellen aber extrem hohe Anforderungen an die Justagegenauigkeit der optischen Komponenten insbesondere der Gitter. Aufgrund der langen optischen Wege in einem CPA-Lasersystem führen schon geringe thermische Effekte zu Justagefehlern und damit zu einer deutlichen Verschlechterung der Impulsqualität. Für die Erzeugung von höheren Harmonischen an Festkörperoberflächen ist aus diesem Grund eine stetige Überwachung der Laserparameter notwendig. Neben Energie und Spektrum muß auch der zeitliche Impulsverlauf mit hoher dynamischer Auflösung überwacht werden.

Die Detektion der Harmonischen selber ist aufgrund der hohen Absorption in Luft und sämtlichen Materialien nicht mit den herkömmlichen Meßmethoden durchzuführen. Für die Experimente wurde eigens ein VUV-Gitterspektrometer inklusive Detektor konstruiert. Die Werte für die Transmission des VUV-Gitters liegt um eine Größenordnung unter denen von optischen Gittern. Der im Bildwandler eingesetzte Phosphor ändert seine Eigenschaften mit der Zeit, sodaß absolute Messungen der Intensität der Harmonischen nicht möglich war. Die Quanteneffizienz der ebenfalls für die Messungen eingesetzten rückseitig gedünnte CCD-Kamera verändert sich mit der Strahlungsdosis (siehe Kapitel 3.4.2). Für eine quantitative Messung muß unmittelbar vor jeder Messung eine Kalibrierung der CCD-Kamera mit einer bekannten Strahlungsquelle, z. B. der Hohlkathodenentladungsquelle vorgenommen werden. Die Durchführung der Experimente erfordert aufgrund der Strahlführung und -fokussierung durch reflektive Optik hohe Anforderungen an die Justagegenauigkeit. Die komplette Strahlführung muß im Vakuum erfolgen.

5.6 Ausblick

Femtosekunden-Laser generierte Röntgenquellen sind aufgrund der fortschreitenden Verkleinerung der Laseranlagen auf Laborgröße verkleinert worden. Insbesondere die Miniaturisierung läßt die Kosten für die Quellen deutlich sinken und den Einsatz in technischen Anwendungen möglich erscheinen. Die ultrakurzen Röntgenimpulse ermöglichen es erstmals Röntgenspektroskopie mit Femtosekunden-Zeitauflösung vorzunehmen. Durch die hohe Zeitauflösung können direkte Untersuchungen der Strukturveränderungen vorgenommen werden. Die Quelle verfügt über hohe Brillanz und einen breiten Spektralbereich. Durch die Wahl des Targetmaterials läßt sich die Röntgenwellenlänge an das jeweilige Experiment anpassen. Mit zweidimensional gebogenen Kristallen ist eine effektive Fokussierung der Strahlung möglich. Die ultrakurzen Röntgenimpulse sind, bedingt durch die Erzeugungsmechanismen, inkohärent. Andererseits bieten nichtlineare Prozesse, wie die Erzeugung höherer Harmonischer, eine Möglichkeit zur Herstellung kohärenter

Impulse.

Die Erzeugung höherer Harmonischer an Festkörperoberflächen hat gegenüber der Erzeugung in Gasen den Vorteil der nicht existenten Phasenanpassungsprobleme. Wie die Simulationen zeigen, ist die Effizienz im relativistischen Bereich besonders hoch und es sollten Attosekunden-Impulse realisierbar sein [11]. Ein Problem können jedoch Plasmainstabilitäten bei hohen Laserintensitäten darstellen, die die Erzeugung der Harmonischen stören. In unseren Experimenten zeigte sich bei hohen Laserintensitäten eine starke Abnahme der Intensitäten der Harmonischen bei gleichzeitigem Anwachsen des Strahlungshintergrunds aus dem Plasma. Kürzere und steilere Laserimpulse könnten das Problem lösen, sind aber aus technischen Gründen schwer zu realisieren.

Die Erzeugung von Mikroplasmen mit Femtosekunden-Laserimpulsen stellt eine neuartige punktförmige Lichtquelle dar. Der extrem breite Spektralbereich umfaßt den Vakuum-Ultravioletten Strahlungsbereich und geht über den weichen Röntgenbereich bis hin zur harten Röntgenstrahlung mit MeV Energie. Die Strahlung wird auf eine Zeitskala von unter 1 ps emittiert und gehört somit zu den kürzesten im Labor herstellbaren Lichtimpulsen.

Literaturverzeichnis

- [1] Antoine de Saint-Exupéry. *Le Petit Prince*. Librairie Gallimard, Paris, 1946.
- [2] M. Gravila, (Hrsg.). *Atoms in Intense Fields*, Boston, 1992. Academic Press.
- [3] Z. Chang, A. Rundquist, J. Zhou, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, X. Liu, B. Shan, J. Liu, L. Niu, M. Gong, und X. Zhang. Demonstration of a sub-picosecond x-ray streak camera. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 133, 1996.
- [4] A. L’Huillier, K. J. Schafer, und K. C. Kulander. Theoretical aspects of intense field harmonic generation. *J. Phys. B* **24**, 3315, 1991.
- [5] P. Gibbon. Efficient production of fast electrons from femtosecond laser interaction with solid targets. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 664, 1994.
- [6] R. Lichters, J. Meyer-ter Vehn, und A. Pukhov. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Phys. Plasmas* **3**, 3425, 1996.
- [7] D. von der Linde und K. Rzàzewski. High order optical harmonic generation from solid surfaces. *Appl. Phys. B* **63**, 499, 1996.
- [8] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, und M. H. R. Hutchinson. Spatial coherence measurements of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756, 1996.
- [9] J. Zhang, M. Zepf, P. A. Norreys, A. E. Dangor, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, A. P. Fews, P. Gibbon, M. H. Key, P. Lee, P. Loukakos, S. Moustazis, D. Neely, F. N. Walsh, und J. S. Wark. Coherence and bandwidth measurements of harmonics generated from solid surfaces irradiated by intense picosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **54**, 1597, 1996.
- [10] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, und A. Mysyrowicz. Observation of laser-assisted auger decay in argon. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180, 1994.
- [11] V. T. Platonenko und V. V. Strehlov. Spatiotemporal structure of the combined field of high-order harmonics and generation of attosecond pulses. *Quantum. Electron.* **24**, 779, 1996.
- [12] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, und R. W. Falcone. High density plasmas produced by ultrafast laser pulses. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 155, 1989.

- [13] J. D. Kmetec, C. L. Gordon, III, J. J. Macklin, B. E. Lemoff, G. S. Brown, G. S., und S. E. Harris. MeV x-ray generation with a femtosecond laser. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1527, 1992.
- [14] R. Shepherd, R. Booth, D. Price, M. Bowers, D. Swan, J. Bonlie, B. Young, J. Dunn, B. White, und R. Stewart. Ultrafast x-ray streak camera for use in ultrashort laser-produced plasma research. *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 719, 1995.
- [15] G. Jenke, H. Schüler, T. Engers, D. von der Linde, I. Uschmann, E. Förster, und K. Gäbel. Kilovolt x-ray emission from femtosecond laser-produced plasmas. In J. L. Martin, A. Migus, G. A. Mourou, und A. H. Zewail, (Hrsg.), *Ultrafast Phenomena VIII, Springer Series in Chemical Physics*, Band 55, Seite 278, Heidelberg, 1993. Springer-Verlag.
- [16] T. Mißalla, I. Uschmann, E. Förster, G. Jenke, und D. von der Linde. Monochromatic focusing of subpicosecond x-ray pulses in the keV-range. *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 1288, 1999.
- [17] C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson, und C. P. J. Barty. Simulation of ionization ignition and inner atom shell ionization in ultrafast laser driven clusters. In *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII*, Band 7, Seite 168. OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington DC), 1997.
- [18] C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P.-A. Albouy, J.-P. Geindre, P. Audebert, J.-C. Gauthier, E. Förster, J.-L. Martin, und A. Antonetti. Femtosecond time-resolved x-ray diffraction on laser-heated organic films. *Nature* **330**, 490, 1997.
- [19] D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, und A. Antonetti. Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **R25**, 52, 1995.
- [20] S. Kohlweyer, G. D. Tsakiris, Wahlström, C. Tillman, und I. Mercer. Harmonic generation from solid-vacuum interface irradiated at high laser intensities. *Opt. Comm.* **117**, 431, 1995.
- [21] T. Engers, W. Fendel, H. Schüler, H. Schulz, und D. von der Linde. Second harmonic generation in plasmas produced by femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **43**, 4564, 1991.
- [22] P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustazis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, und A. E. Dangor. Efficient extreme XUV harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1832, 1996.
- [23] T. Engers. *Wechselwirkung intensiver Femtosekunden-Lichtimpulse mit inhomogenen Laserplasmen*. Dissertation, Universität- Gesamthochschule-Essen, 1994.
- [24] P. Gibbon und E. Förster. Short-pulse laser-plasma interactions. *Plasma Phys. Control. Fusion* **38**, 769, 1996.

- [25] S. V. Bulanov, N. M. Naumova, und F. Pegoraro. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Phys. Plasmas* **1**, 745, 1994.
- [26] D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, J.-P. Chambaret, A. Mysyrowicz, und A. Antonetti. Generation of ultrashort XUV pulses by harmonic generation from solid surfaces. In *SPIE Proceedings*, Band 2770, Seite 98, 1996.
- [27] L. D. Landau und I. Lifshitz. *Cours of Theoretical Physics, vol. 2, The classical Theory of Fields*. Pergamon Press, Oxford, 1975.
- [28] M. V. Klein und T. E. Furtak. *Optics*. John Wiley & Sons, Inc., 1986.
- [29] S. Brand und H. D. Dahmen. *Physik*. Springer-Verlag, 1980.
- [30] R. L. Carman, C. K. Rhodes, und R. F. Benjamin. Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in CO₂-laser-produced plasmas. *Phys. Rev. A* **24**, 2649, 1981.
- [31] Verschiedene Autoren. *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII*, Band 7. OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington DC), 1997.
- [32] M. D. Perry und G. Mourou. *Science* **264**, 917, 1994.
- [33] C. J. Joshi und P. B. Corkum. *Phys. Today* **48**, 36, 1995.
- [34] D. Kühlke, U. Herpers, und D. von der Linde. Soft x-ray emission from subpicosecond laser-produced plasmas. *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1785, 1987.
- [35] H. M. Milchberg, I. Lyubomirsky, und C. G. Durfee III. Factors controlling the x-ray pulse emission from an intense femtosecond laser-heated solid. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2654, 1991.
- [36] A. Rousse, P. Audebert, J. P. Geindre, F. Fallières, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, G. Grillon, und A. Antonetti. Efficient k_α x-ray source from femtosecond laser-produced plasmas. *Phys. Rev. E* **50**, 2200, 1994.
- [37] N. M. Ceglio. Revolution in x-ray optics. *J. X-ray Sci. Technol.* **1**, 7, 1989.
- [38] H. Schulz und D. von der Linde. Generation of intense femtosecond laser pulses. In A. Antonetti, (Hrsg.), *Applications of Ultrashort Laser Pulses in Science and Technology*, Band 1268, Seite 30, Washington, 1990. The International Society of Optical Engineering, Proc. SPIE.
- [39] D. Strickland und G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Comm.* **56**, 219, 1985.

- [40] C. Le Blanc, G. Grillon, J. P. Chambaret, A. Migus, und A. Antonetti. Compact and efficient multipass ti:sapphire system for femtosecond chirped-pulse amplification at the terawatt level. *Opt. Lett.* **18**, 140, 1993.
- [41] J. M. Dias, C. Stenz, N. Lopes, X. Badiche, F. Blasco, A. Dos Santos, L. Oliveira e Silva, A. Mysyrowicz, A. Antonetti, und J. T. Medonça. Experimental evidence of photon acceleration of ultrashort laser pulses in relativistic ionization fronts. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4773, 1997.
- [42] U. Teubner, G. Kühnle, und F. P. Schäfer. Detailed study of the effect of a short prepulse on soft x-ray spectra generated by a high-intensity krfx laser pulse. *Appl. Phys. B* **54**, 493, 1992.
- [43] J. A. R. Samson. *Techniques of vakuum ultraviolet spectroscopy*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1967.
- [44] B. L. Henke, R. White, und B. Lundberg. Semiempirical determination of mass absorption coefficients for the 5 to 50 angstrom x-ray region. *J. Appl. Phys.* **26**, 98, 1957.
- [45] J. Hollandt, M. Kühne, und B. Wende. High-current hollow-cathode source as a radiant intensity standard in the 40–125-nm wavelength range. *Appl. Opt.* **33**, 68, 1994.
- [46] F. Paschen. *Ann. Pys.* **50**, 901, 1916.
- [47] J. Hollandt. *Strahlungsnormale für die solare Spektroradiometrie im Vakuum-UV*. Dr. H.-J. Köster, 1994.
- [48] W. S. Boyle und G. E. Smith. Charged coupled semiconductor devices. *Bell Syst. Tech. J.* **49**, 587, 1970.
- [49] T. Wilhein. *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendungen im Bereich weicher Röntgenstrahlung*. Dissertation, Universität Göttingen, 1994.
- [50] E. D. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. Academic Press Inc. , 1997.
- [51] B. G. Magorrian und M. N. Allinson. Soft x-ray damage in CCD detectors. *Nuc. Ins. Meth.* **A273**, 599, 1988.
- [52] C. S. Borso. *Nuc. Ins. Meth.* **201**, 65, 1982.
- [53] F. J. Grunthaner und P. J. Grunthaner. *Mat. Sci. Rep.* **1**, 65, 1986.
- [54] P. J. Caplan, E. H. Poindexter, B. E. Deal, und R. R. Razouk. *J. Appl. Phys.* **50**, 5847, 1979.
- [55] B. E. Deal. Standarized terminology for oxide charges associated with thermally oxidized silicon. *IEEE Trans. Electron Devices* **ED-27**, 606, 1980.

- [56] K. Sokolowski-Tinten und G. Jenke. Verfahren zur Beseitigung von durch Licht aus dem Wellenlängenbereich von 20 nm bis 120 nm verursachte Strahlenschäden an gedünnten und rückseitig zu belichtenden CCD-Detektoren. Deutsches Patentamt, München, Veröffentlichungsdatum 1997. Aktenzeichen DE19961022250 19960603.
- [57] R. A. Stern, L. Shing, und M. M. Blouke. Quantum efficiency measurements and modeling of ion-implanted/laser annealed CCDs: X-Ray, EUV, UV, and optical data. *Appl. Opt.* **33**, 2521, 1994.
- [58] E. L. Dereniak und G. Crowe. *Optical Radiation Detectors*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1984.
- [59] D. E. Husk und S. E. Schnatterly. Quantum efficiency and linearity of 16 phosphors in the soft-x-ray regime. *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 660, 1992.
- [60] E. L. Benitez, D. E. Husk, S. E. Schnatterly, und C. Tarrío. A surface recombination model applied to large features in inorganic phosphor efficiency measurements in soft x-ray region. *J. Appl. Phys.* **70**, 3256, 1991.
- [61] Proxitronik, Bensheim. *Phosphorschirme*.
- [62] Schott Glaswerke, Mainz. *Katalog Optische Glasfilter*.
- [63] H. Cole und N. R. Stemple. Effect of crystal perfection and polarity on absorption edges seen in bragg diffraction. *J. Appl. Phys.* **33**, 2227, 1962.
- [64] D. Taupin. *Théorie dynamique de la diffraction des rayons X par les cristaux déformés*. Dissertation, Faculté des Sciences de l' Université de Paris Centre d' Orsay, 1964.
- [65] Z. Pinsker. *Dynamical scattering of x-rays in crystals*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New-York, 1978.
- [66] I. Uschmann, E. Förster, K. Gäbel, G. Hölzer, und M. Ensslen. X-ray reflection properties of elastically bent perfect crystals in bragg geometry. *J. Appl. Cryst.* **26**, 404, 1993.
- [67] L. von Hámos. Formation of true x-ray images by reflection on crystal mirrors. *Zeitschr. f. Kristallographie*. **101**, 17, 1938.
- [68] I. Uschmann. *Beiträge zur Röntgendiagnose laserinduzierter Plasmen mit gebogenen Kristallen*. Dissertation, Physikalisch-Astronomische Fakultät der Friedrich-Schiller Universität Jena, 1990.
- [69] T. Mißalla. *Hochauflösende lichtstarke Röntgenspektroskopie laserproduzierter Plasmen*. Dissertation, Physikalisch-Astronomische Fakultät der Friedrich-Schiller- Universität Jena, 1997.

- [70] E. Förster, J. Heinisch, P. Heist, G. Hölzer, I. Uschmann, F. Scholze, und F. Schäfers. Measurements of the integrated reflectivity of elastically bent crystals. In *BESSY Jahresbericht*, Band 59, Seite NN. Berliner Elektronenspeicherring für Synchrotronstrahlung, 1992.
- [71] F. N. Chukhovskii und E. Förster. Time-dependent x-ray bragg diffraction. *Act. Cryst.* **A51**, 668, 1995.
- [72] H. He, J. S. Wark, E. Förster, E. Uschmann, O. Renner, M. Kopecky, und W. Blyth. Double-crystal high-resolution x-ray spectroscopy of laser-produced plasmas. *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 27, 1993.
- [73] K. Gäbel. *Hochauflösende Röntgenspektroskopie und -mikroskopie mit gebeugten Kristallen im Wellenlängenbereich $< 1\text{ nm}$* . Dissertation, Physikalisch-Astronomische Fakultät der Friedrich-Schiller Universität Jena, 1992.
- [74] P. J. Burnet. *Properties of Silicon*. 1988.
- [75] R. Adair, L. L. Chase, und S. A. Payne. Nonlinear refractive-index measurements of glasses using three-wave frequency mixing. *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 875, 1987.
- [76] E. T. J. Nibbering, M. A. Franco, B. S. Prade, G. Grillon, C. Le Blanc, und A. Mysyrowicz. Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation. *Opt. Comm.* **119**, 479, 1995.
- [77] J. Peatross, J. L. Chaloupka, und D. D. Meyerhofer. High-order harmonic generation with an annular laser beam. *Opt. Lett.* **19**, 942, 1994.
- [78] R. Lichters und Meyer ter Vehn J. High laser harmonics from plasma surfaces: Intensity and angular dependence, cutoffs and resonance layers at density ramps. In *Inst. of Physics Conf. Series*, Band 154, Seite 221. Inst. of Physics Publishing, Bristol, 1997.
- [79] C.-G. Wahlström, C. Altucci, M. Bellini, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L. L'Huiller, C. Lynga, und R. Zerne. Temporal coherence of high-order harmonics. In *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII*, Band 7, Seite 185. OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington DC), 1997.
- [80] L. Plaja, L. Roso, K. Rzàzewski, und M. Lewenstein. Generation of attosecond pulse trains during the reflection of a very intense laser on a solid surface. *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1904, 1998.
- [81] Luxél Corp., Washington, USA. *Sub-Micron Foils*.
- [82] U. Teubner, D. Altenbernd, P. Gibbon, E. Förster, A. Mysyrowicz, P. Audebert, J.-P. Geindre, J. C. Gauthier, R. Lichters, und J. Meyer-ter Vehn. Observation of VUV radiation at wavelengths in the ω_p - and $2\omega_p$ -wavelength range emitted from femtosecond laser-plasmas. *Opt. Comm.* **144**, 217, 1997.
- [83] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52, 1987.

- [84] H. Schulz. *Wechselwirkung von intensiven Femtosekunden-Laserimpulse mit Festkörpern*. Dissertation, Universität- Gesamthochschule-Essen, 1991.
- [85] H. Dumont und P. Troussel. X-ray calibration of Kodak SB film in the 1.5-2.2-keV region. *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 1749, 1991.
- [86] P. D. Rockett, C. R. Bird, C. J. Hailey, D. Sullivan, D. B. Brown, und P. G. Burkhalter. X-ray calibration of Kodak Direct Exposure film. *Appl. Opt.* **24**, 2536, 1985.
- [87] J. A. Bearden. X-ray wavelengths. *Rev. Mod. Phys.* **39**, 78, 1967.
- [88] A. Rousse, A. Antonetti, P. Audebert, A. Dos Santos, F. Fallières, J. P. Geindre, G. Grillon, A. Mysyrowicz, und J. C. Gauthier. Observation of x-ray fluorescence resulting from photoionization by a femtosecond laser-produced plasma x-ray source. *J. Phys. B* **27**, L697, 1994.
- [89] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. P. Gordon, J. Bokor, E. N. Glytsis, und R. W. Falcone. Efficient coupling of high-intensity subpicosecond laser pulses into solids. *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1068, 1993.
- [90] G. Jenke, H. Schüller, T. Engers, D. von der Linde, T. Mißalla, E. Förster, P. Audebert, und J. P. Geindre. X-ray microscopy from femtosecond laser-produced plasmas. In *Generation and Application of Ultrashort X-ray Pulses*, Salamanca, Spain, 1994. Euroconference.
- [91] B. L. Henke, F. G. Fujiwara, und M. A. Tester. Low-energy x-ray response of photographic films. Experimental characterization. *J. Opt. Soc. Am. B* **1**, 828, 1984.
- [92] C. Tillman, A. Persson, C.-G. Wahlström, S. Svanberg, und K. Herrlin. Imaging using hard x-rays from laser-produced plasma. *Appl. Phys. B* **61**, 333, 1995.
- [93] W. Theobald, R. Häfner, C. Wülker, und R. Sauerbrey. Temporally resolved measurement of electron densities ($\geq 10^{23} \text{ cm}^3$) with high harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 298, 1996.
- [94] A. Rundquist, E. Zeek, H. Wang, Z. Chang, M. Murnane, H. Kapteyn, und I. Chiriov. Enhanced harmonic generation using pulse shaping. In *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII*, Band 7, Seite 81. OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington DC), 1997.
- [95] C. P. J. Barty, T. Guo, C. LeBlanc, F. Ráksi, C. Rose-Petruck, J. Squier, B. Walker, K. R. Wilson, V. V. Yakovlev, und K. Yamakawa. Ultrahigh peak power lasers in the 10-fs regime. In *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII*, Band 7, Seite 246. OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington DC), 1997.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei Allen die in den letzten Jahren, in der einen oder anderen Weise am Entstehen dieser Arbeit beigetragen haben, herzlich bedanken.

Herrn Prof. Dr. D. von der Linde möchte ich für die Möglichkeit der Durchführung der Arbeit in seiner Gruppe und besonders für die gute Zusammenarbeit bei der Vorbereitung und Durchführung der Forschungsaufenthalte in Palaiseau danken. Den Frankreichfahrern Dr. Torsten Engers und Andreas Orisch danke ich für die vielen Stunden der Planung, Vorbereitung, die langen Tage im Labor und so mancher Improvisationskunst. Bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppen in Essen und Palaisau möchte ich mich für die mannigfaltige Hilfe und Lösung vieler Probleme bedanken.

Je remercie tous les chercheurs du groupe LOA: André Mysyrowicz, Pierre Agostini, George Grillon, Pierre Breger, Eric Nibbering, Peter Curley, Julien Schins, Antoine Rousse, Abdallah Bouhal. La conception et la bonne marche des expériences n'ont pu s'effectuer que grâce au soutien constant et efficace des personnes du groupe.

Mein besonderer Dank gilt meiner Familie, die mir in vielen täglichen Belangen den Rücken frei gehalten hat und so manches mal ihre eigenen Wünsche zurückstellen mußte.